

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号

特許第7084698号
(P7084698)

(45)発行日 令和4年6月15日(2022.6.15)

(24)登録日 令和4年6月7日(2022.6.7)

(51)国際特許分類

F I

C 0 7 D 311/96 (2006.01)

C 0 7 D 311/96

H 0 1 L 51/50 (2006.01)

H 0 5 B 33/22

D

C 0 7 D 213/53 (2006.01)

H 0 5 B 33/14

B

C 0 7 D 239/26 (2006.01)

C 0 7 D 213/53

C 0 7 D 251/24 (2006.01)

C 0 7 D 239/26

請求項の数 11 (全115頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2017-91996(P2017-91996)
 (22)出願日 平成29年5月2日(2017.5.2)
 (65)公開番号 特開2017-203026(P2017-203026
 A)
 (43)公開日 平成29年11月16日(2017.11.16)
 審査請求日 令和2年4月15日(2020.4.15)
 (31)優先権主張番号 10-2016-0056626
 (32)優先日 平成28年5月9日(2016.5.9)
 (33)優先権主張国・地域又は機関
 韓国(KR)

(73)特許権者 512187343
 三星ディスプレイ株式会社
 Samsung Display Co.,
 Ltd.
 大韓民国京畿道龍仁市器興区三星路1
 1, Samsung-ro, Gihe
 ung-gu, Yongin-si,
 Gyeonggi-do, Repub
 lic of Korea

(74)代理人 110002619
 特許業務法人PORT

(72)発明者 糸井 裕亮
 神奈川県横浜市鶴見区菅沢町2-7 株
 式会社サムスン日本研究所内

(72)発明者 三宅 秀夫

最終頁に続く

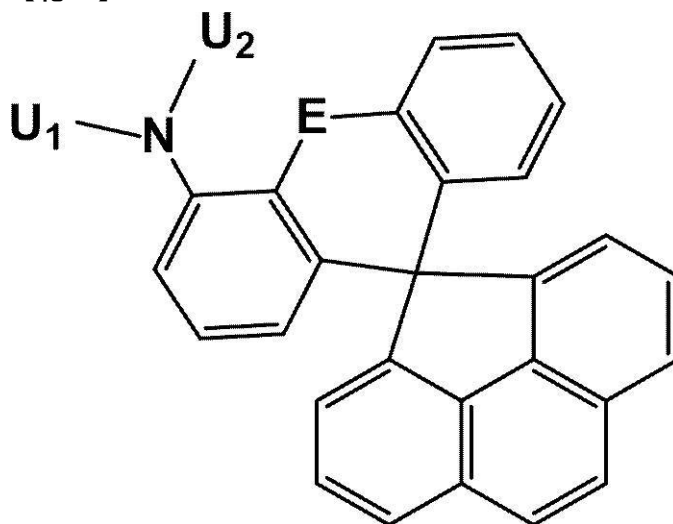
(54)【発明の名称】 多環化合物及びこれを含有有機電界発光素子

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記の化学式(5)で示される多環化合物。

【化1】



(5)

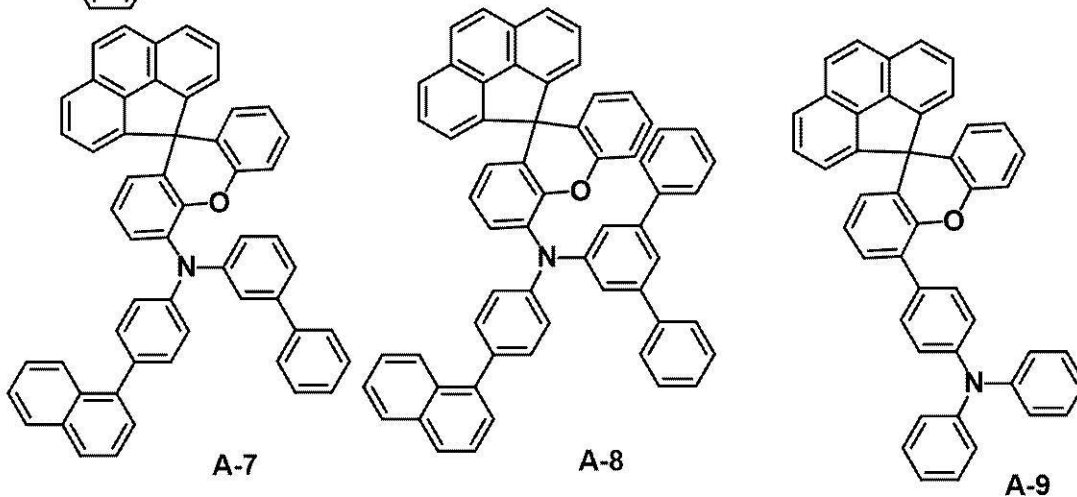
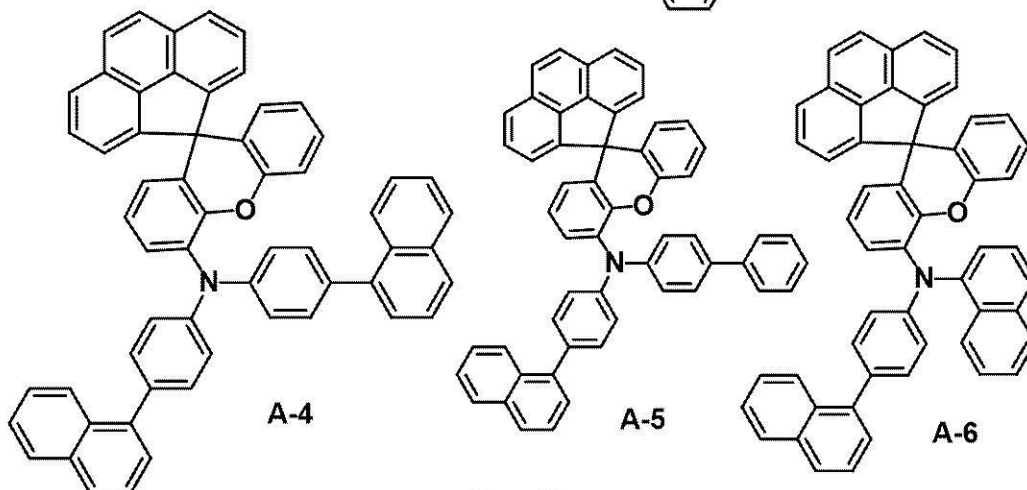
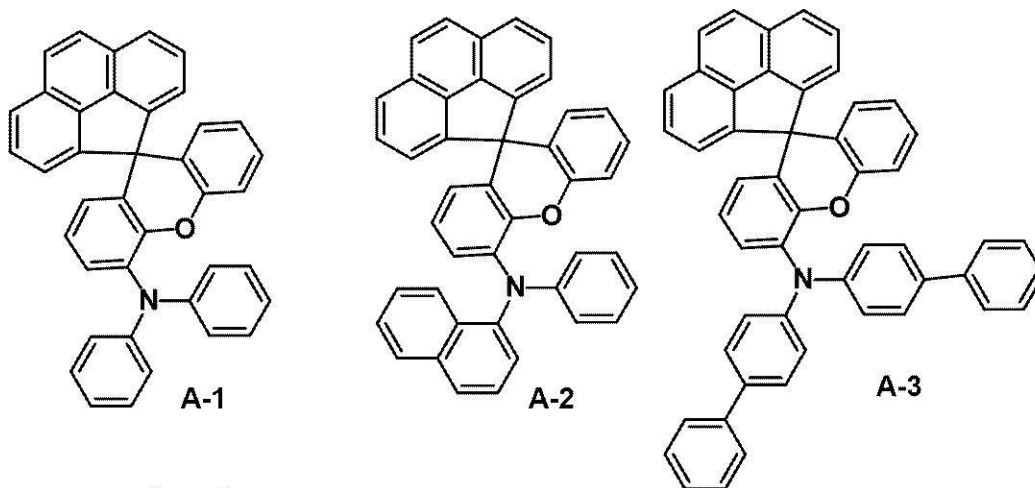
前記化学式(5)において、

U₁およびU₂は、それぞれ独立して、環を形成するための6個以上30個以下の炭素原子を有する置換若しくは無置換のアリール基、または環を形成するための2個以上30個以下の炭素原子を有する置換若しくは無置換のヘテロアリール基であり、
EはO、S、またはNR'である。

【請求項2】

下記の化合物A-1～A-23で示された化合物の中から選択されるいずれか1つである多環化合物。

【化2】



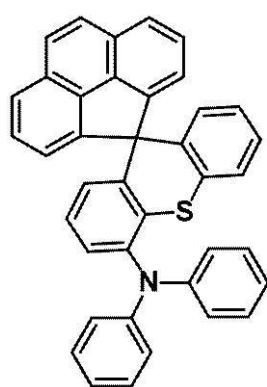
10

20

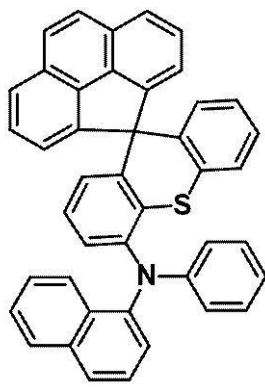
30

40

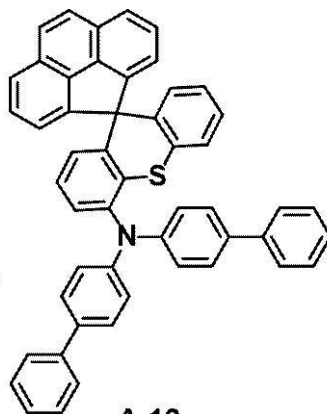
50



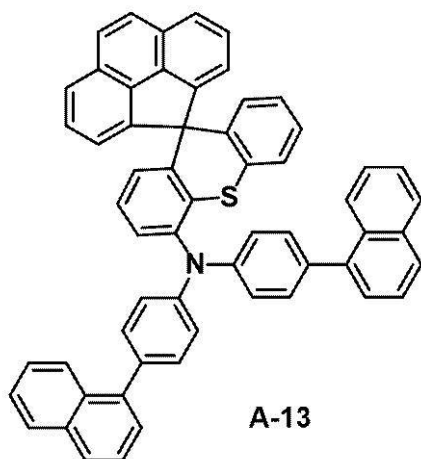
A-10



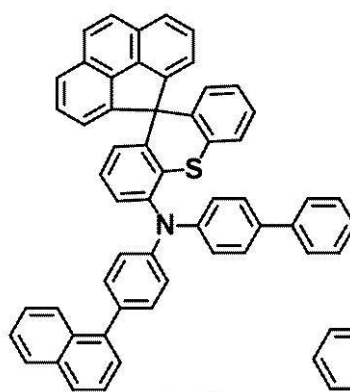
A-11



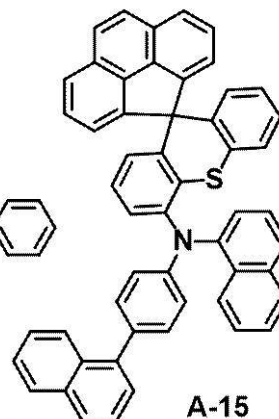
A-12



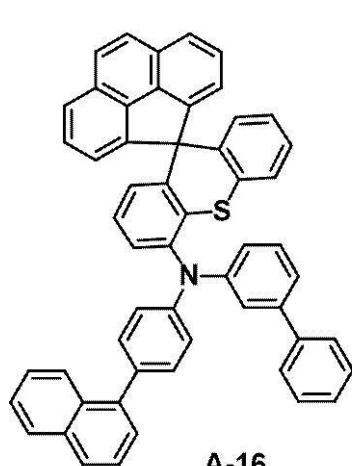
A-13



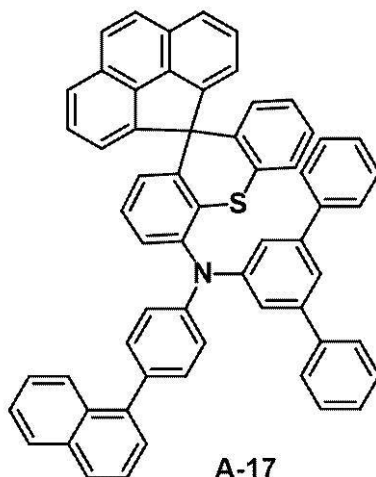
A-14



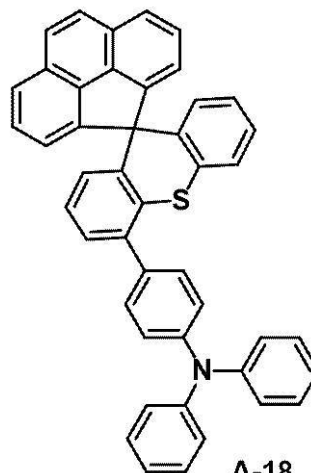
A-15



A-16



A-17



A-18

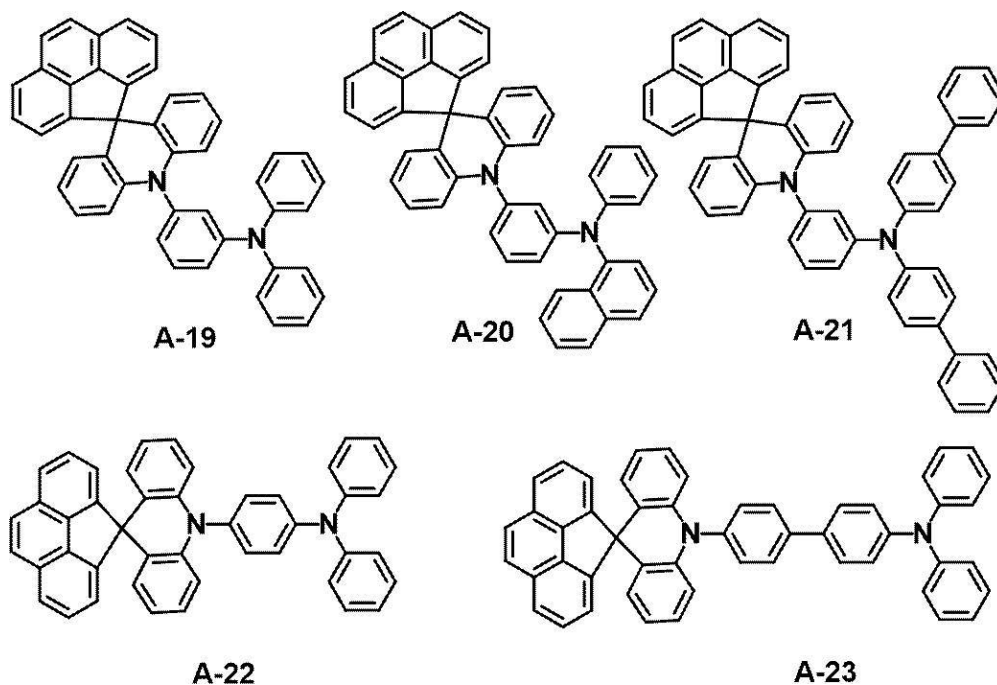
10

20

30

40

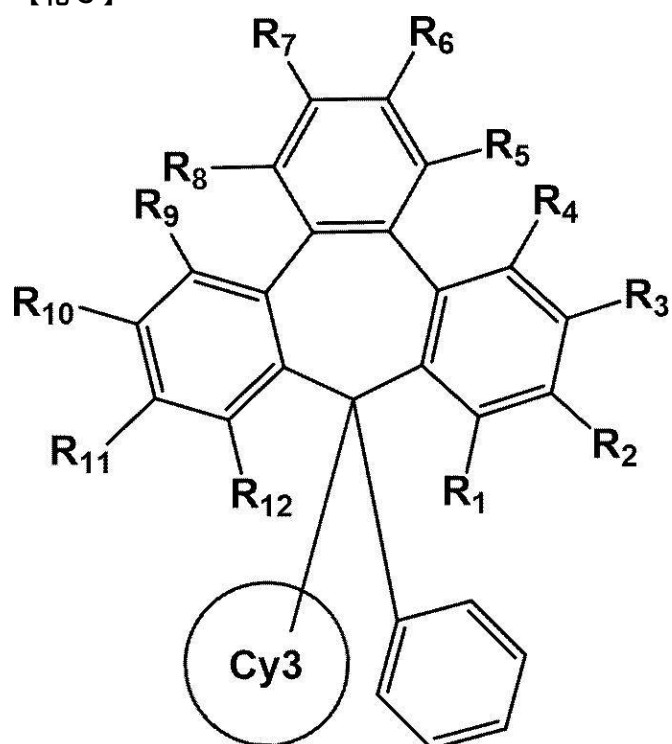
50



【請求項 3】

下記の化学式（11）で示される多環化合物。

【化 3】



（11）

前記化学式（11）において、

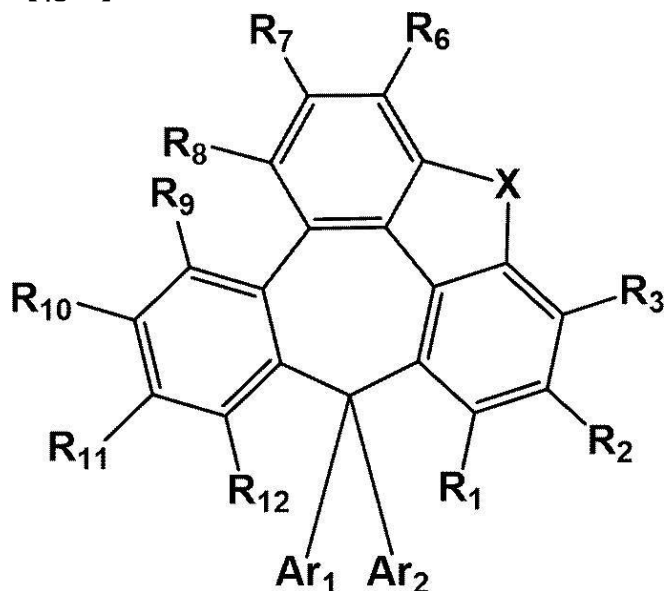
Cy3は、置換若しくは無置換の3環又は4環のアリール基であり、

R₁～R₁₂は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基から選択され、隣接する基と互いに結合して環を形成することができる。

【請求項 4】

下記の化学式（１２）で示される多環化合物。

【化 4】



（１２）

前記化学式（１２）において、

Xは、O、S、NR₁₃、CR₁₄R₁₅又はSiR₁₆R₁₇であり、

R₁₃～R₁₇は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、

Ar₁及びAr₂の一方は、置換もしくは無置換のアントラセニル基、置換もしくは無置換のピレニル基、置換もしくは無置換のフェナントリル基、置換もしくは無置換のクリセニル基、置換もしくは無置換のトリフェニレニル基、置換もしくは無置換のカルバゾリル基、又は置換もしくは無置換のピリジル基から選択され、

Ar₁及びAr₂の他方は、置換もしくは無置換のフェニル基であり、

R₁～R₃及びR₆～R₁₂は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基から選択され、隣接する基と互いに結合して環を形成することができる。

【請求項 5】

下記の化学式（１３）で示される多環化合物。

10

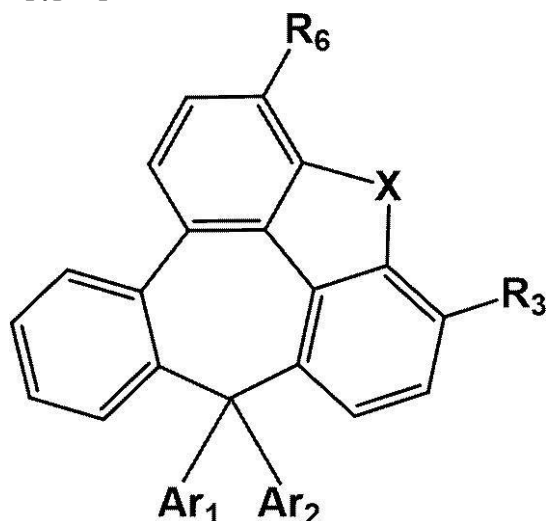
20

30

40

50

【化 5】



10

(13)

前記化学式(13)において、

Xは、O、S、NR₁₃、CR₁₄R₁₅又はSiR₁₆R₁₇であり、R₃及びR₆は、各々独立に置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、

20

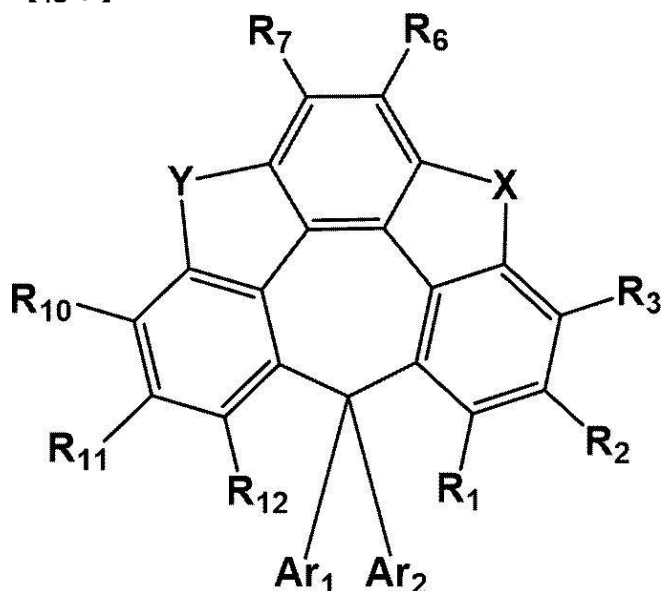
R₁₃～R₁₇は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、Ar₁及びAr₂の一方は、置換もしくは無置換のアントラセニル基、置換もしくは無置換のピレニル基、置換もしくは無置換のフェナントリル基、置換もしくは無置換のクリセニル基、置換もしくは無置換のトリフェニレニル基、置換もしくは無置換のカルバゾリル基、又は置換もしくは無置換のピリジル基から選択され、Ar₁及びAr₂の他方は、置換もしくは無置換のフェニル基である。

30

【請求項6】

下記の化学式(15)で示される多環化合物。

【化 6】



40

(15)

50

前記化学式（１５）において、

Xは、O、S、NR₁₃、CR₁₄R₁₅又はSiR₁₆R₁₇であり、

Yは、O、S、NR₂₀、又は置換若しくは無置換のホスフィンオキシド基であり、

R₁₃～R₁₇は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数１以上２０以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数６以上３０以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数２以上３０以下のヘテロアリール基であり、

R₂₀は、水素、重水素、置換若しくは無置換の環形成炭素数６以上３０以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数２以上３０以下のヘテロアリール基であり、

Ar₁及びAr₂の一方は、置換もしくは無置換のアントラセニル基、置換もしくは無置換のピレニル基、置換もしくは無置換のフェナントリル基、置換もしくは無置換のクリセニル基、置換もしくは無置換のトリフェニレニル基、置換もしくは無置換のカルバゾリル基、又は置換もしくは無置換のピリジル基から選択され、

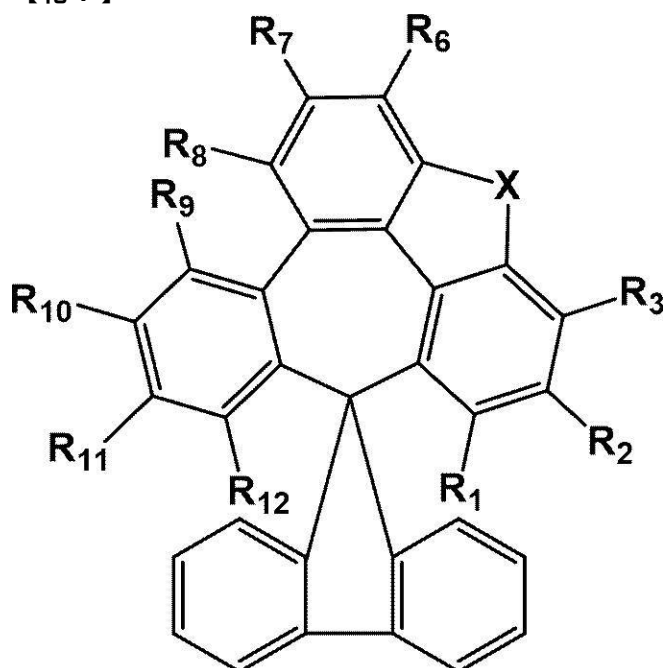
Ar₁及びAr₂の他方は、置換もしくは無置換のフェニル基であり、

R₁～R₃、R₆、R₇及びR₁₀～R₁₂は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数１以上２０以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数６以上３０以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数２以上３０以下のヘテロアリール基から選択され、隣接する基と互いに結合して環を形成することができる。

【請求項７】

下記の化学式（１６）で示される多環化合物。

【化７】



（１６）

前記化学式（１６）において、

Xは、O、S、NR₁₃、CR₁₄R₁₅又はSiR₁₆R₁₇であり、

R₁₃～R₁₇は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数１以上２０以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数６以上３０以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数２以上３０以下のヘテロアリール基であり、

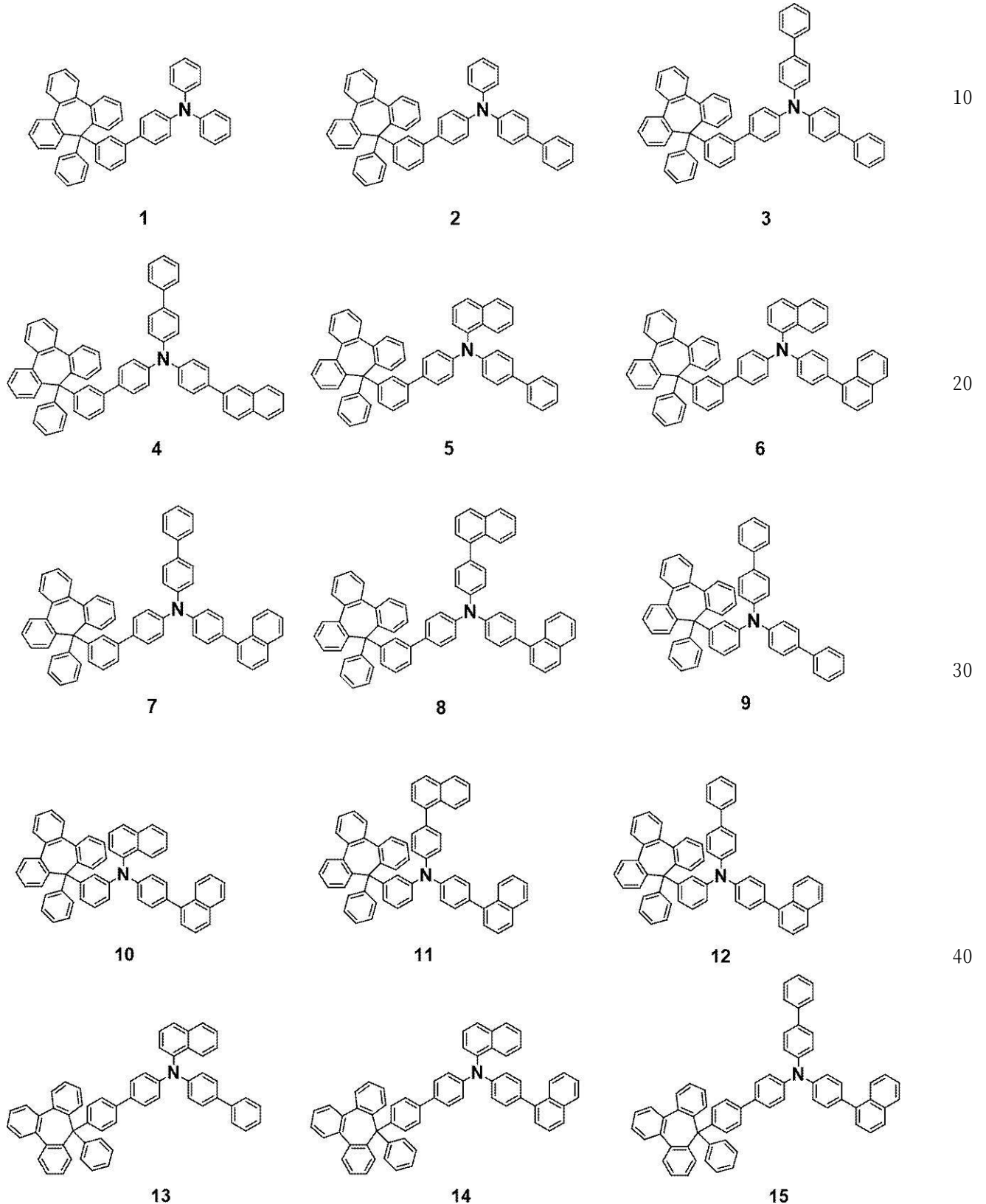
R₁～R₃及びR₆～R₁₂は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数１以上２０以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数６以上３０以下のアリール基、又は置換若し

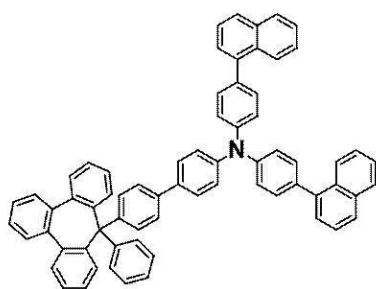
くは無置換の環形成炭素数 2 以上 30 以下のヘテロアリール基から選択され、隣接する基と互いに結合して環を形成することができる。

【請求項 8】

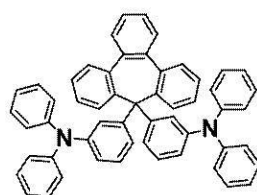
下記の化合物 1～66 及び化合物 67～122 で示された化合物の中から選択されるいずれか 1 つである多環化合物。

【化 8】

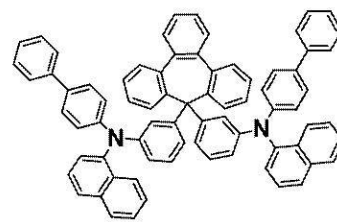




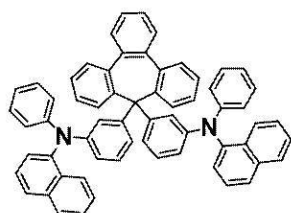
16



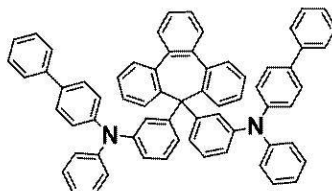
17



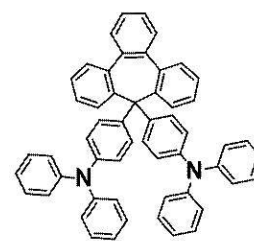
18



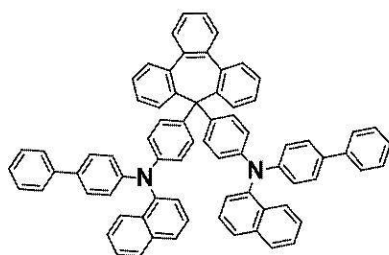
19



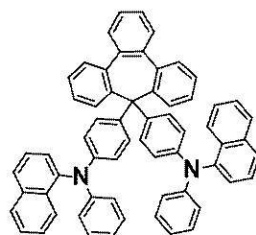
20



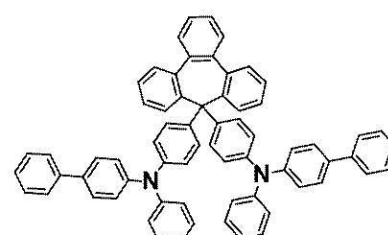
21



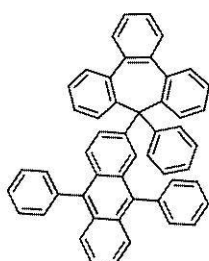
22



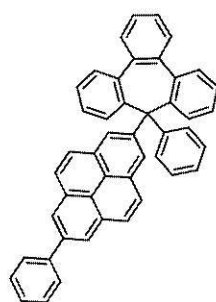
23



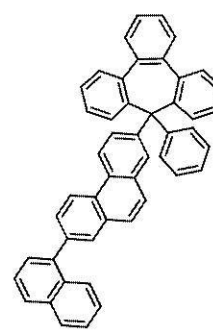
24



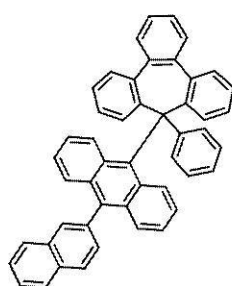
25



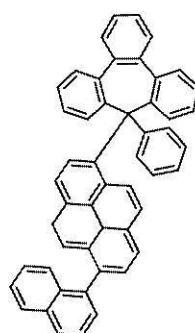
26



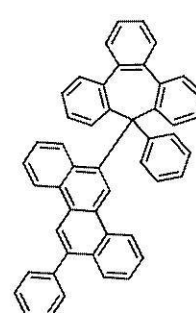
27



28



29



30

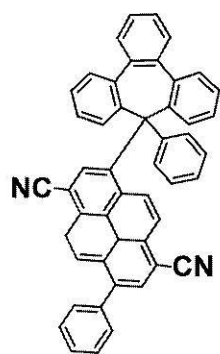
10

20

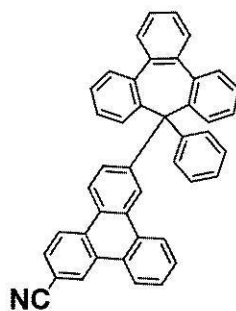
30

40

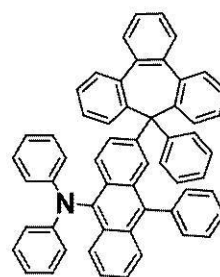
50



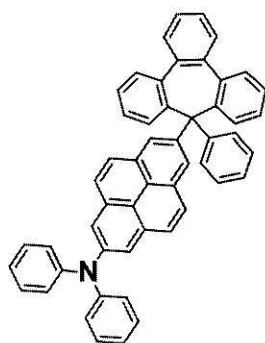
31



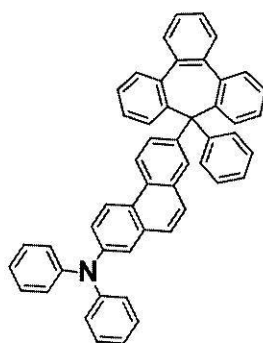
32



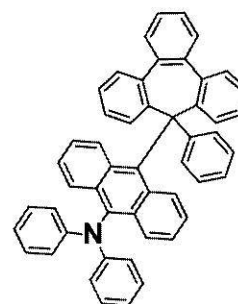
33



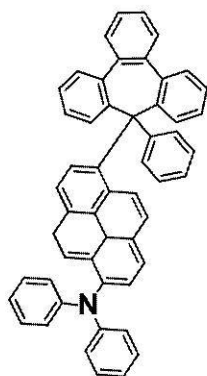
34



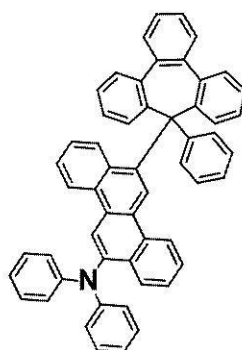
35



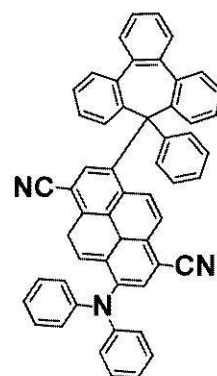
36



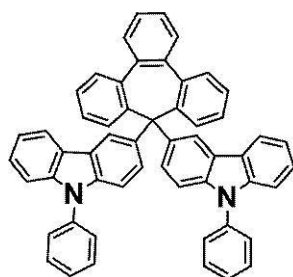
37



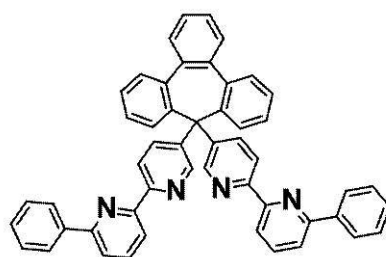
38



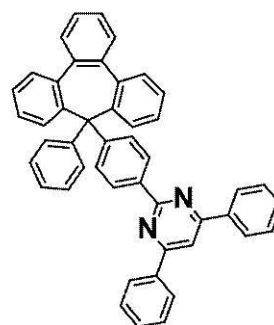
39



40



41



42

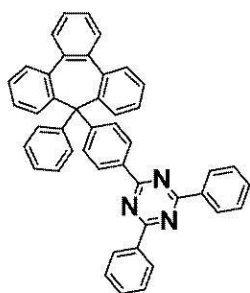
10

20

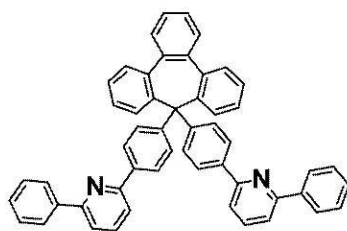
30

40

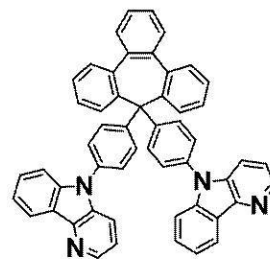
50



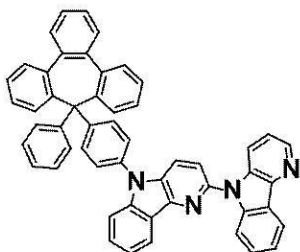
43



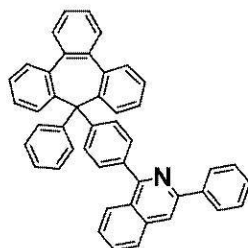
44



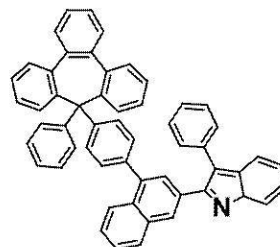
45



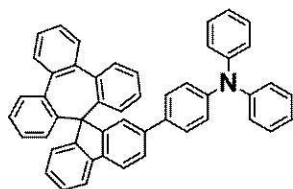
46



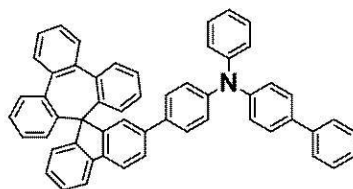
47



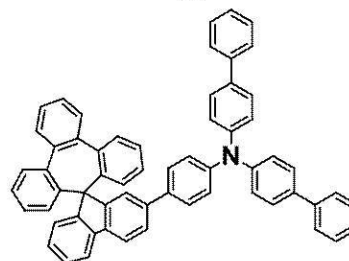
48



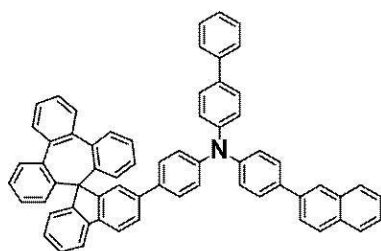
49



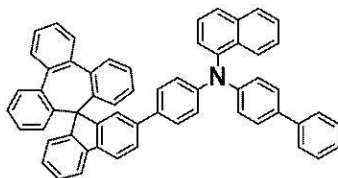
50



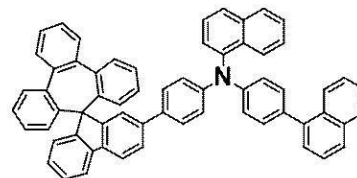
51



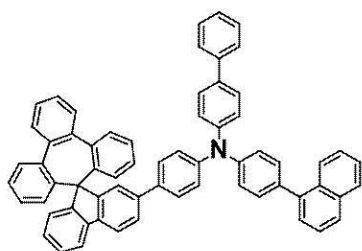
52



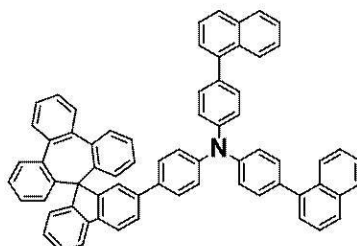
53



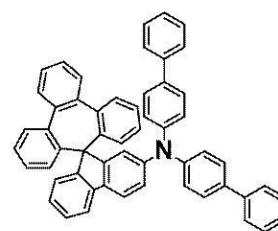
54



55



56



57

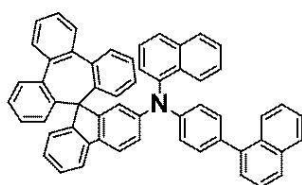
10

20

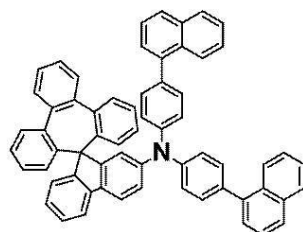
30

40

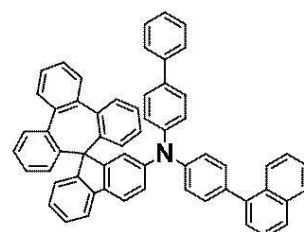
50



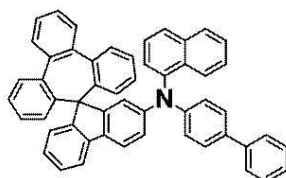
58



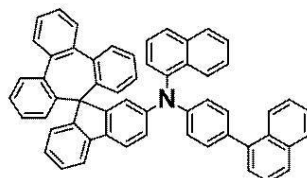
59



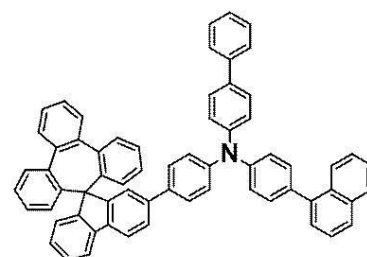
60



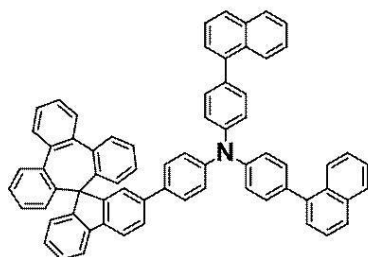
61



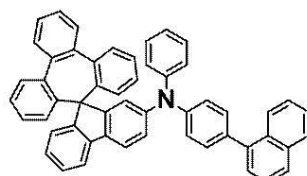
62



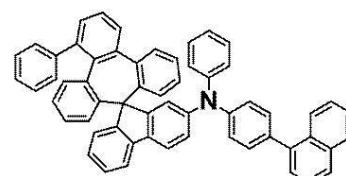
63



64



65



66

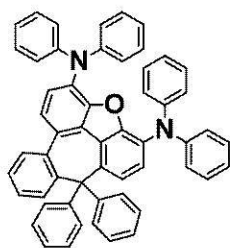
10

20

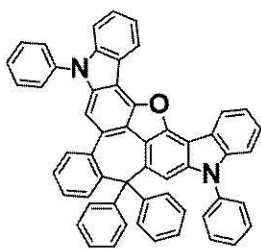
30

40

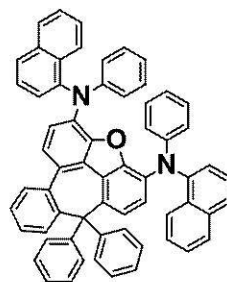
50



67

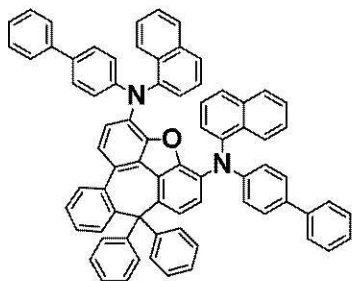


68

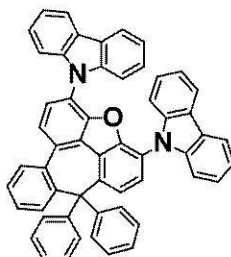


69

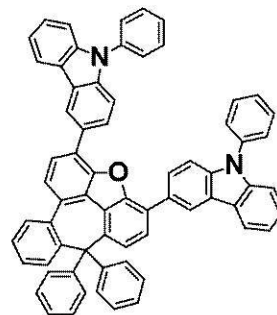
10



70

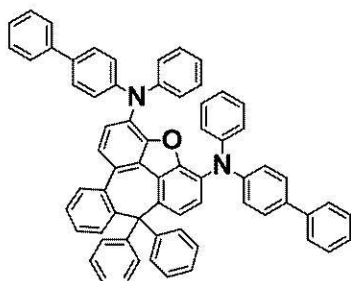


71

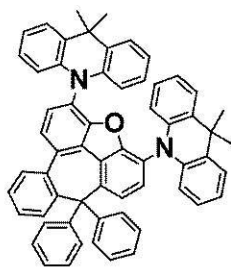


72

20



73



74

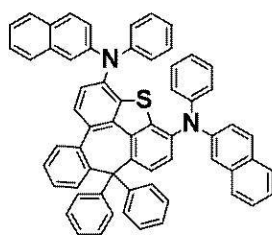


75

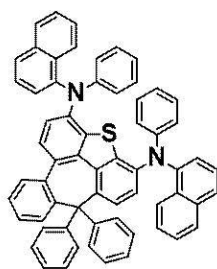
30

40

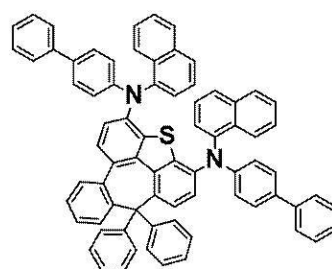
50



76

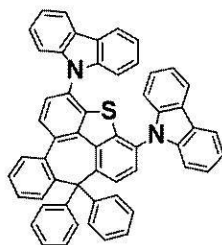


77

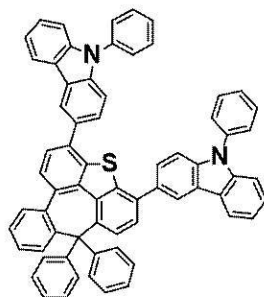


78

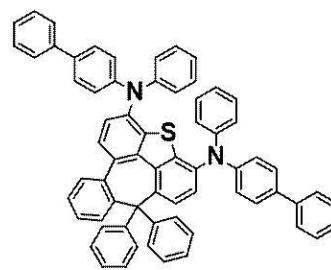
10



79



80



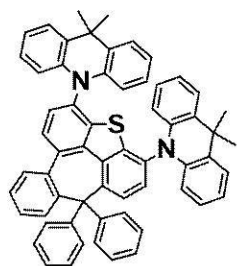
81

20

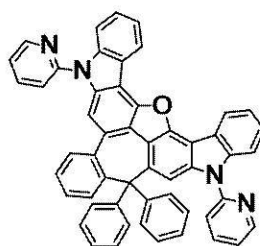
30

40

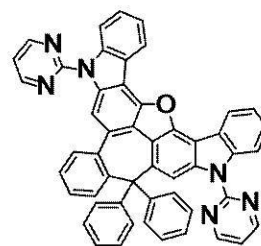
50



82

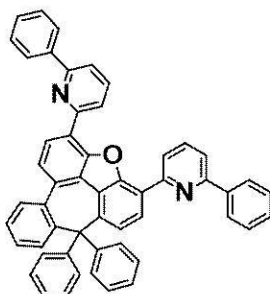


83

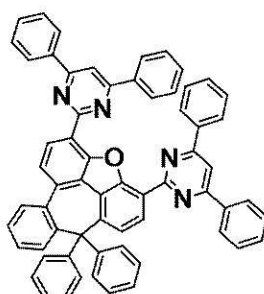


84

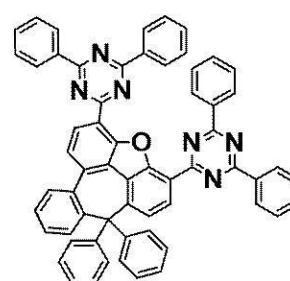
10



85

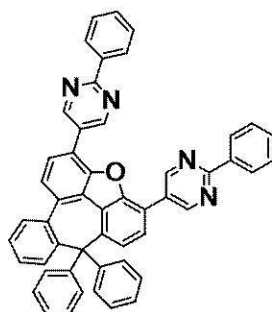


86

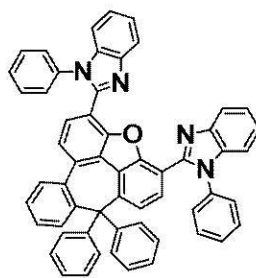


87

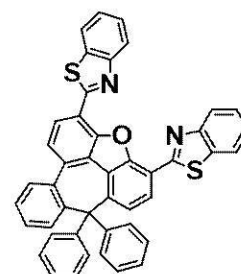
20



88



89

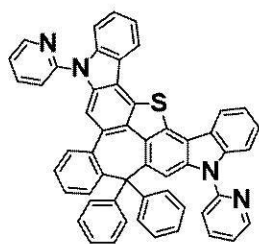


90

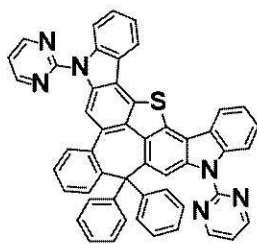
30

40

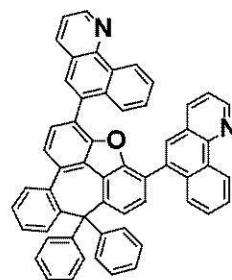
50



91



92



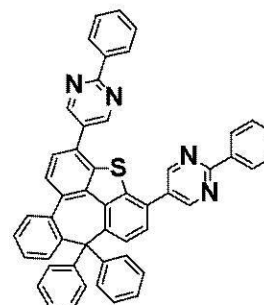
93



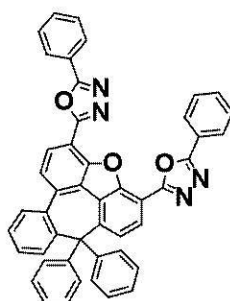
94



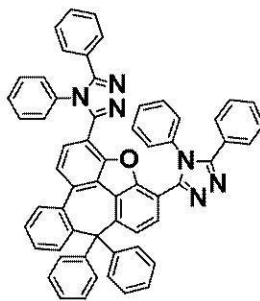
95



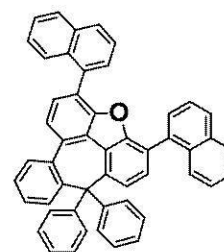
96



97



98



99

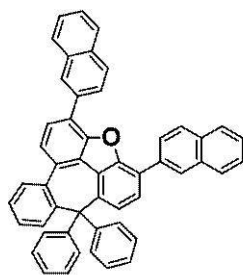
10

20

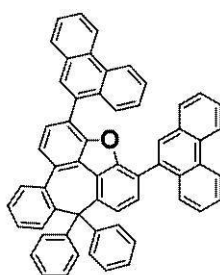
30

40

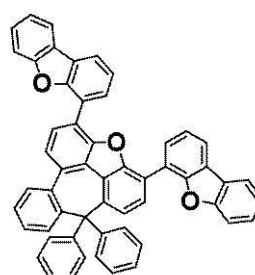
50



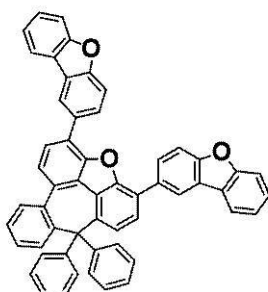
100



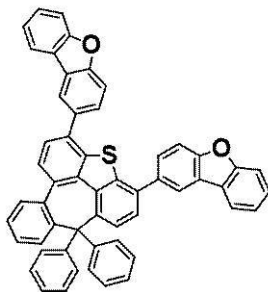
101



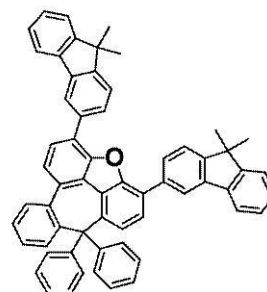
102



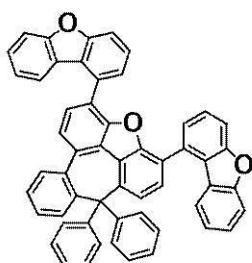
103



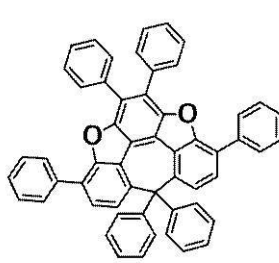
104



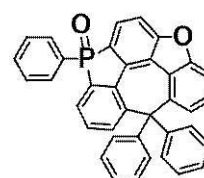
105



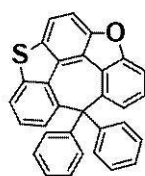
106



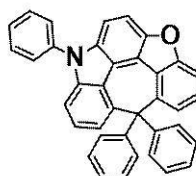
107



108



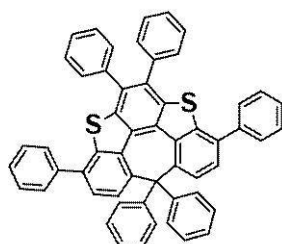
109



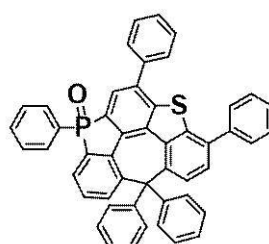
110



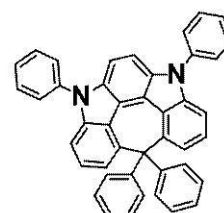
111



112



113



114

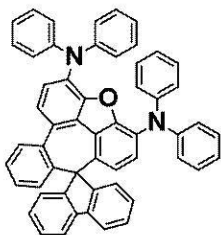
10

20

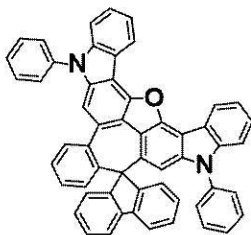
30

40

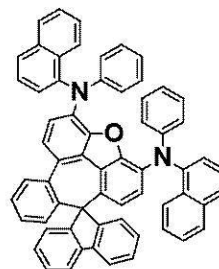
50



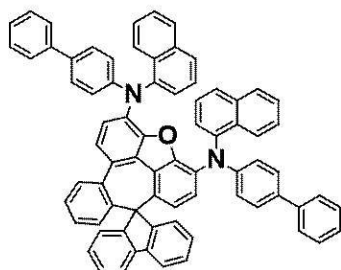
115



116



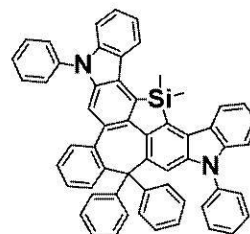
117



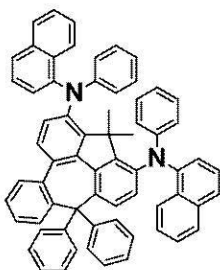
118



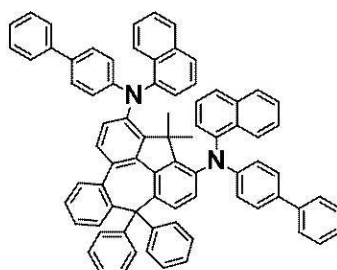
119



120



121



122

【請求項 9】

第 1 電極と、

前記第 1 電極上に配置された正孔輸送領域と、

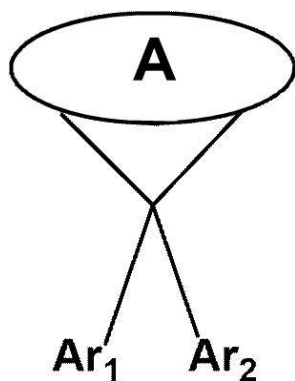
前記正孔輸送領域上に配置された発光層と、

前記発光層上に配置された電子輸送領域と、

前記電子輸送領域上に配置された第 2 電極と、を含み、

前記正孔輸送領域及び前記発光層の中の少なくとも 1 つは、下記の化学式 (1) または化学式 (3) で示される多環化合物を含む有機電界発光素子。

【化 9】



(1)

10

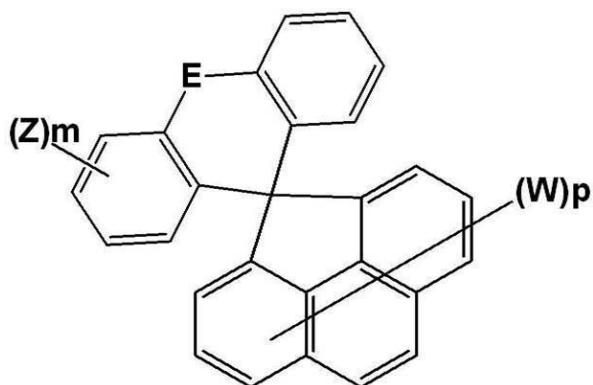
20

30

40

50

【化 10】



10

(3)

前記化学式(1)において、

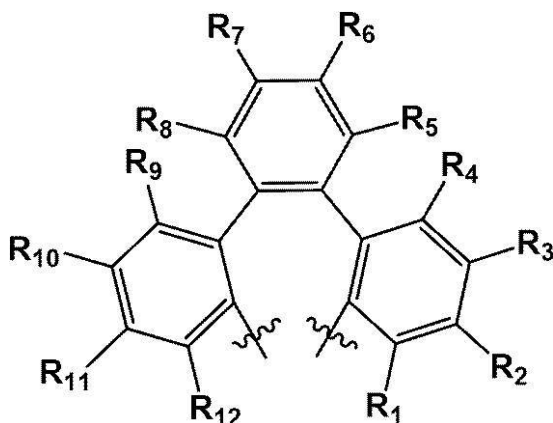
Ar₁及びAr₂の一方は、置換若しくはもしくは無置換のアントラセニル基、置換もしくは無置換のピレニル基、置換もしくは無置換のフェナントリル基、置換もしくは無置換のクリセニル基、置換もしくは無置換のトリフェニレニル基、置換もしくは無置換のカルバゾリル基、置換もしくは無置換のピリジル基から選択され、或いは互いに結合して環を形成し、

Ar₁及びAr₂の他方は、置換もしくは無置換のフェニル基であり、

Aは、下記の化学式(2-1)で示され、

20

【化 11】



30

(2-1)

前記化学式(2-1)において、

R₁～R₁₂は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であるか、或いは隣接する基と互いに結合して環を形成し、

前記化学式(3)で、

Wは、水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上60以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数5以上60以下のヘテロアリール基であり、

pは、0以上8以下の整数であり、

pが2以上である場合、複数のWは、互いに同一であるか、或いは異なり、

EはO、S、またはNR'であり、

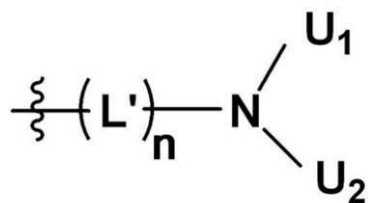
mは0または1であり、

ZおよびR'は、それぞれ独立して、以下の化学式(4)で表され、

40

50

【化 1 2】



(4)

前記化学式(4)において、

U₁およびU₂は、それぞれ独立して、環を形成するための6個以上30個以下の炭素原子を有する置換もしくは無置換のアリール基、または環を形成するための2個以上30個以下の炭素原子を有する置換もしくは無置換のヘテロアリール基であり、

L'は、環を形成するための6個以上30個以下の炭素原子を有する置換または非置換のアリーレン基であり

nは0または1であり、

EがNR'の場合、mは0であり、EがOまたはSの場合、mは1である。

【請求項10】

前記化学式(3)で示される多環化合物は、下記の化合物A-1～A-23で示された化合物の中から選択される少なくとも1つである請求項9に記載の有機電界発光素子。

10

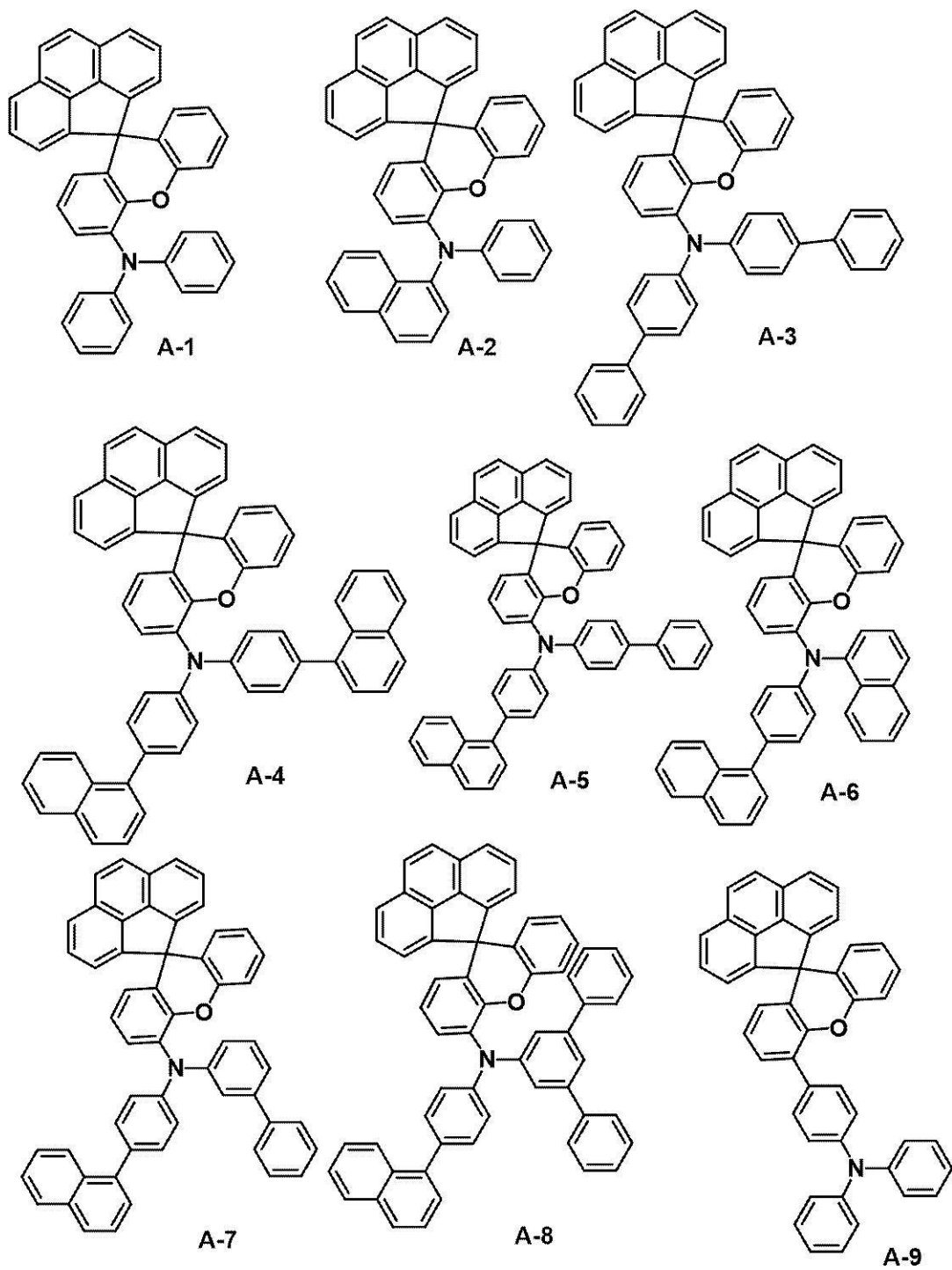
20

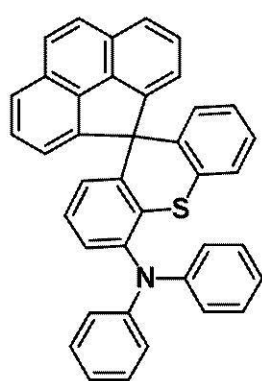
30

40

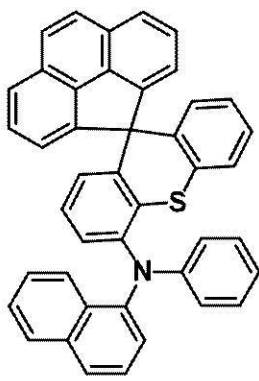
50

【化 1 3】

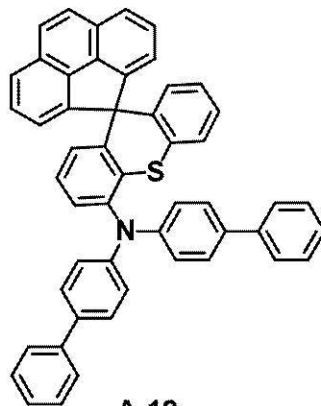




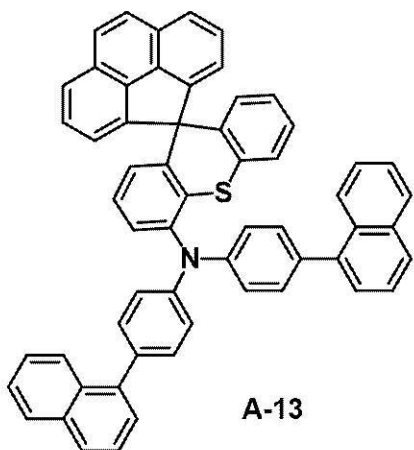
A-10



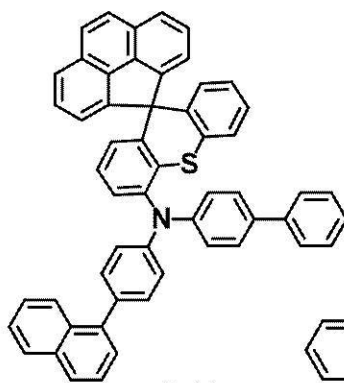
A-11



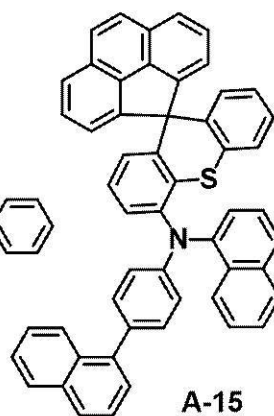
A-12



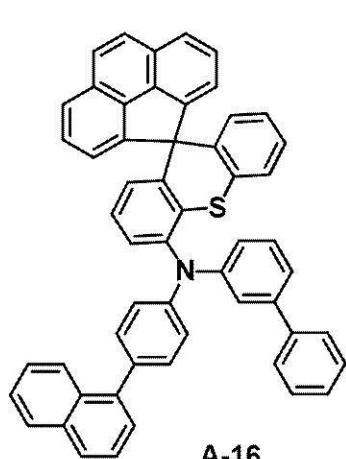
A-13



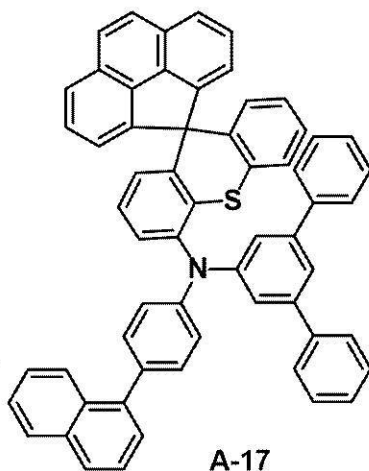
A-14



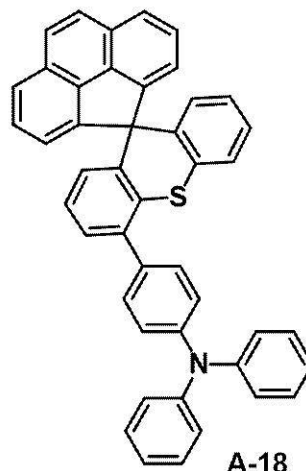
A-15



A-16



A-17



A-18

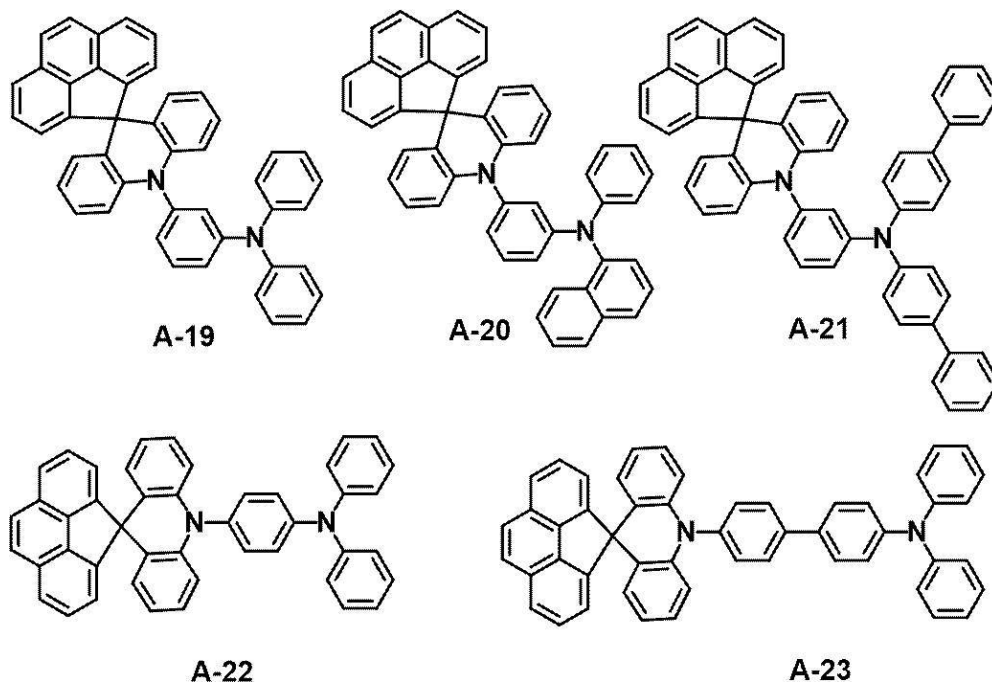
10

20

30

40

50



【請求項 1 1】

第 1 電極と、

前記第 1 電極上に設けられた正孔輸送領域と、

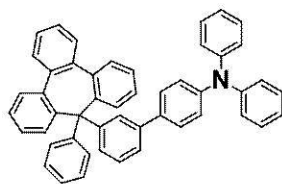
前記正孔輸送領域上に形成された発光層と、

前記発光層上の電子輸送領域と、

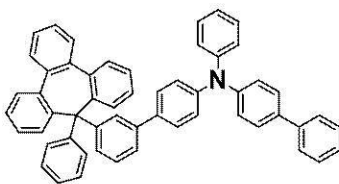
前記電子輸送領域上の第 2 電極と、を含み、

前記正孔輸送領域および前記発光層から選択された少なくとも 1 つが、下記の化合物 1 ～ 66 及び化合物 67 ～ 122 で示された化合物の中から選択される少なくとも 1 つで示された多環化合物を含む、有機電界発光素子。

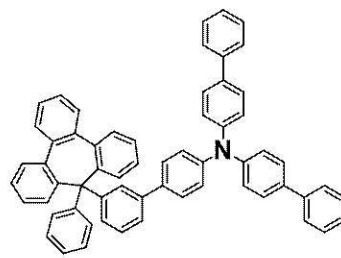
【化 1 4】



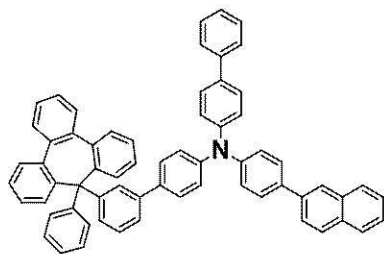
1



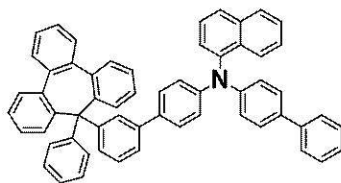
2



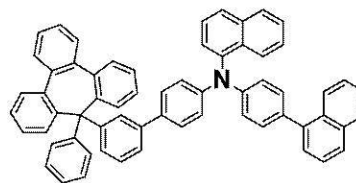
3



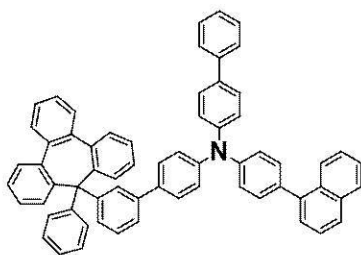
4



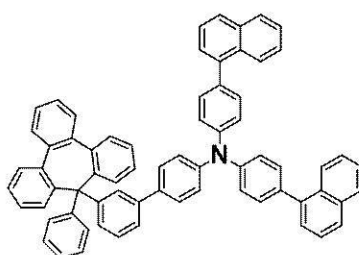
5



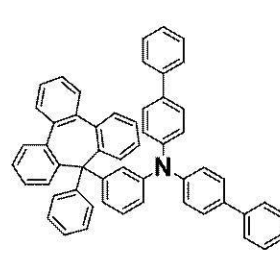
6



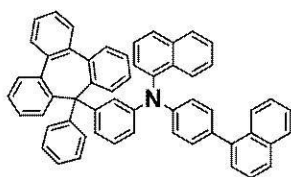
7



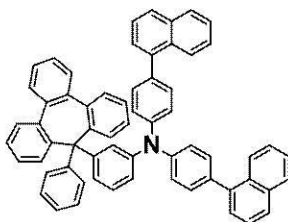
8



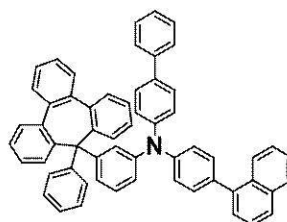
9



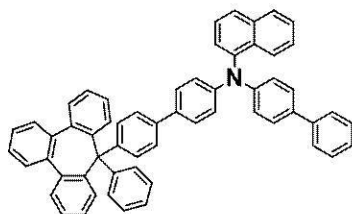
10



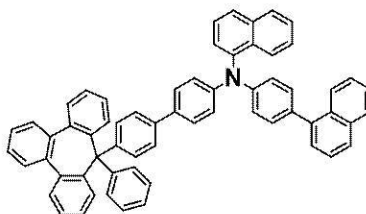
11



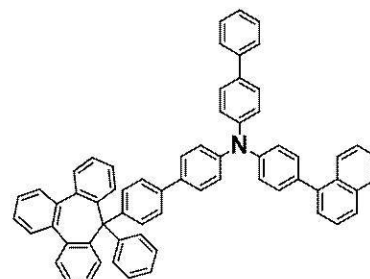
12



13



14



15

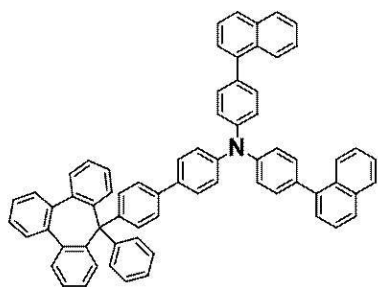
10

20

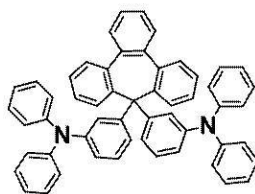
30

40

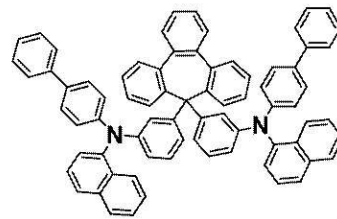
50



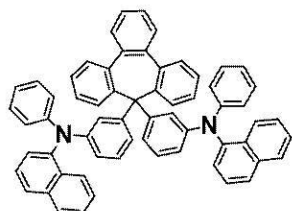
16



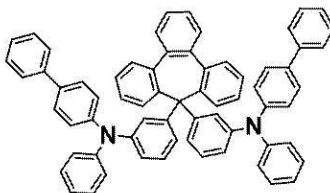
17



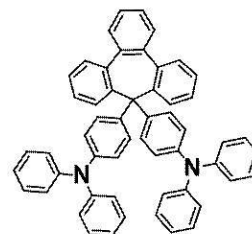
18



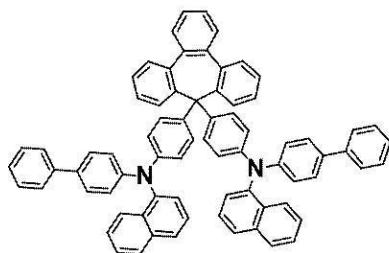
19



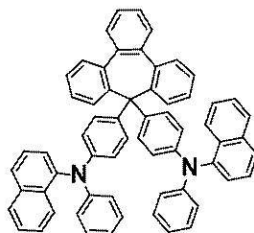
20



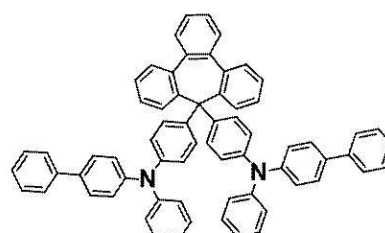
21



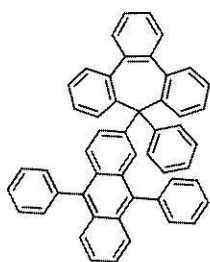
22



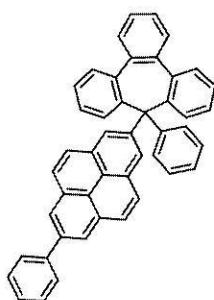
23



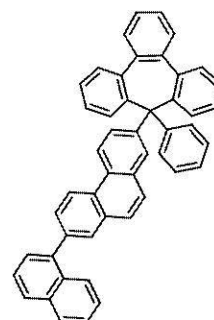
24



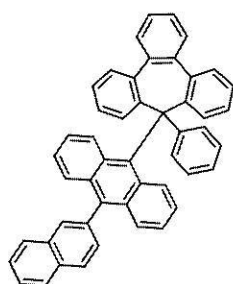
25



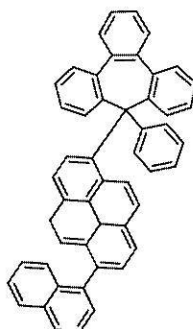
26



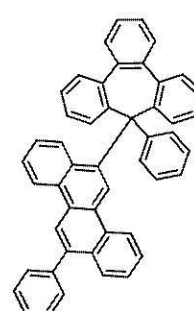
27



28



29



30

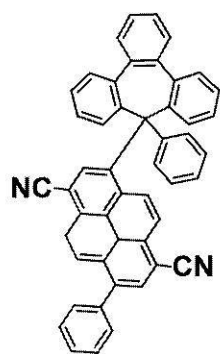
10

20

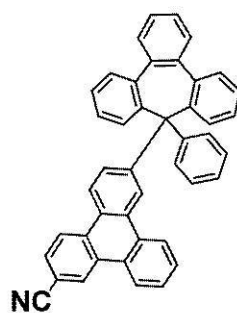
30

40

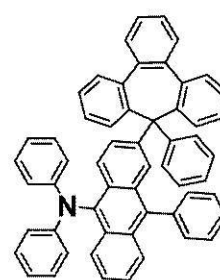
50



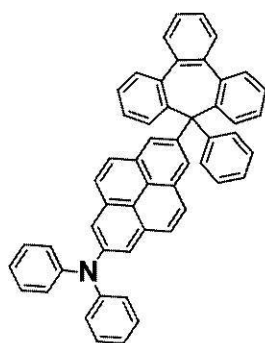
31



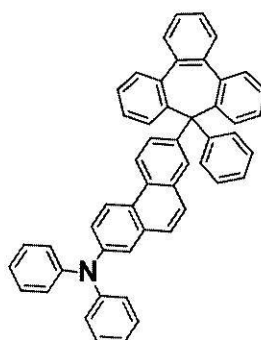
32



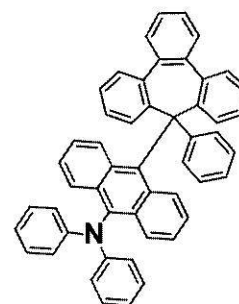
33



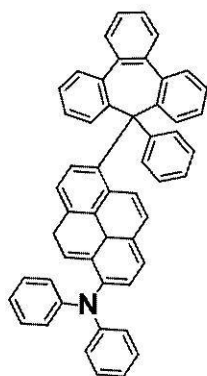
34



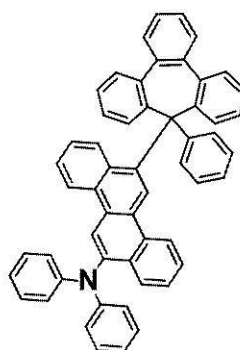
35



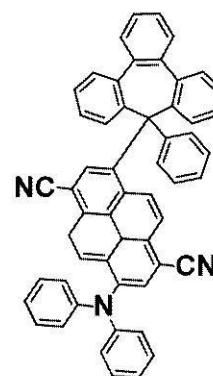
36



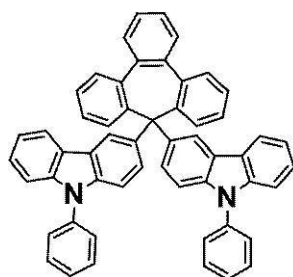
37



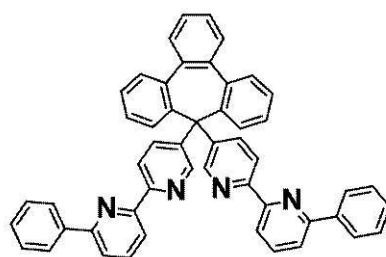
38



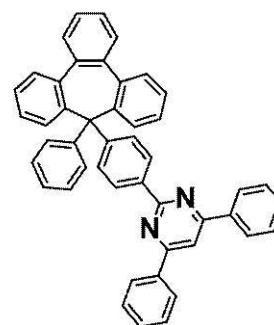
39



40



41



42

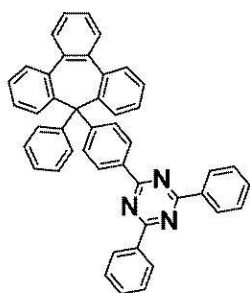
10

20

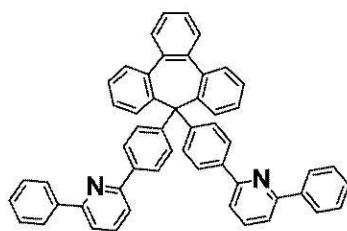
30

40

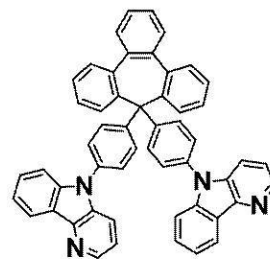
50



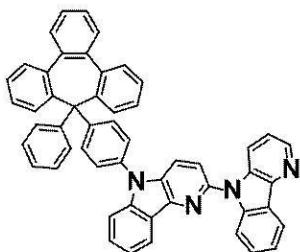
43



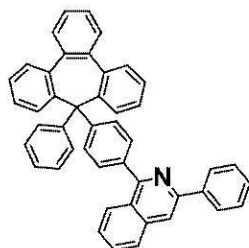
44



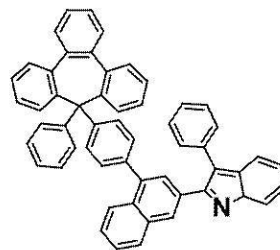
45



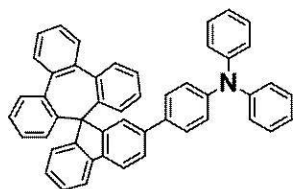
46



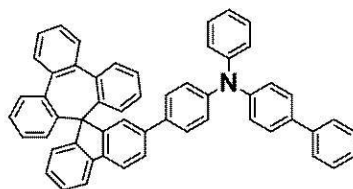
47



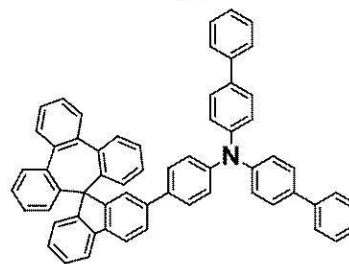
48



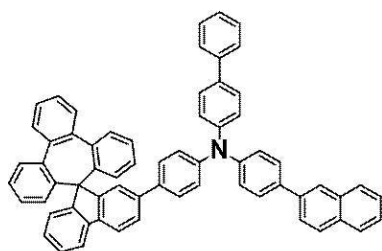
49



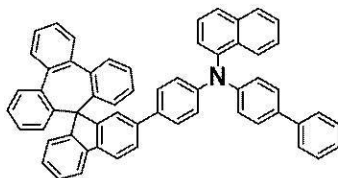
50



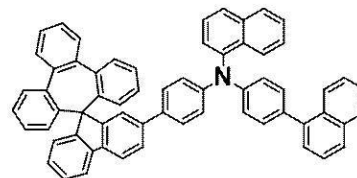
51



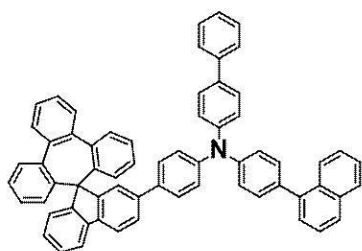
52



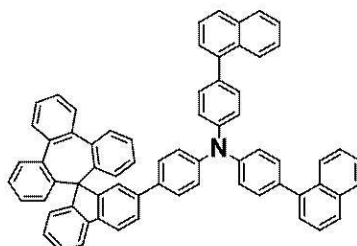
53



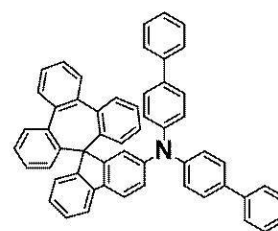
54



55



56



57

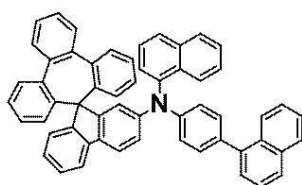
10

20

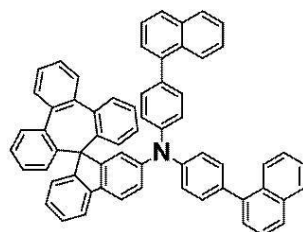
30

40

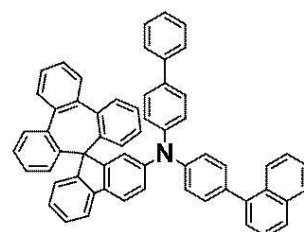
50



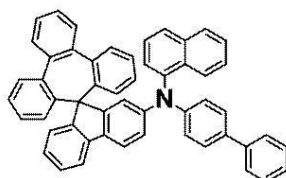
58



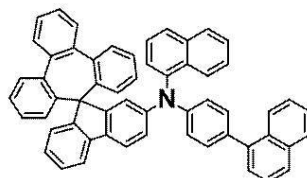
59



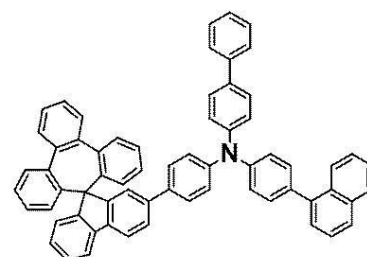
60



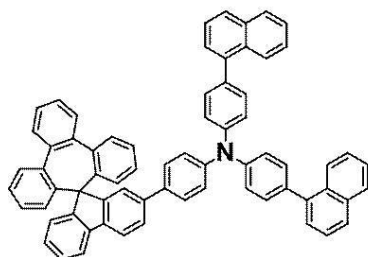
61



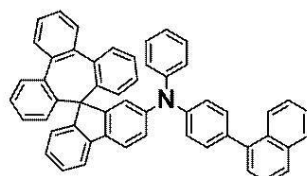
62



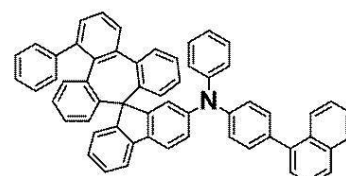
63



64



65



66

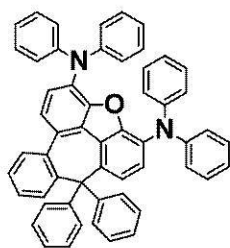
10

20

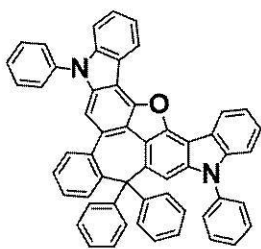
30

40

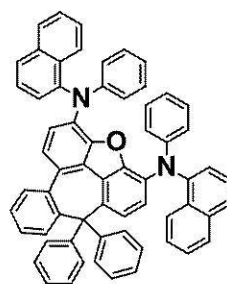
50



67

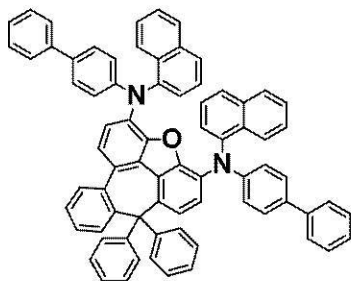


68

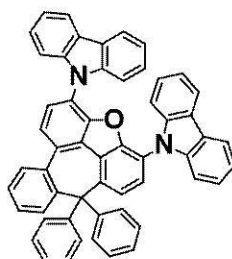


69

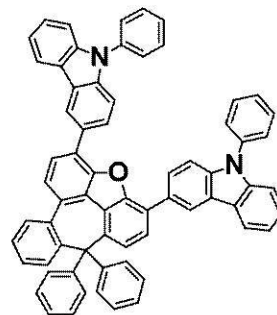
10



70

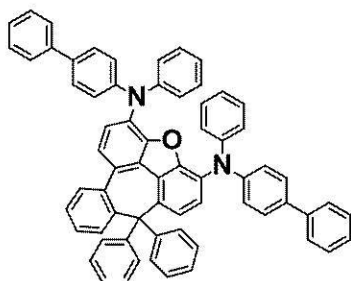


71

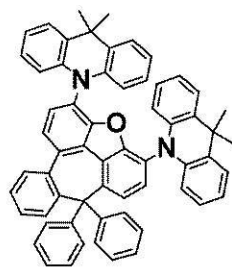


72

20



73



74

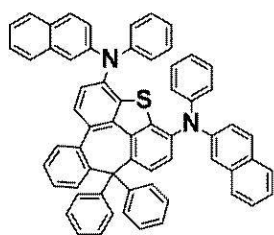


75

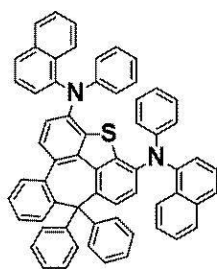
30

40

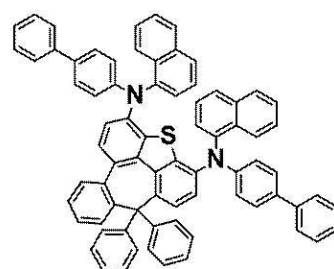
50



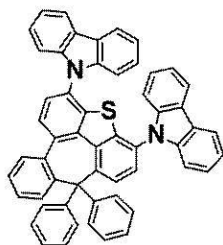
76



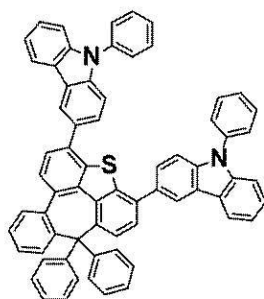
77



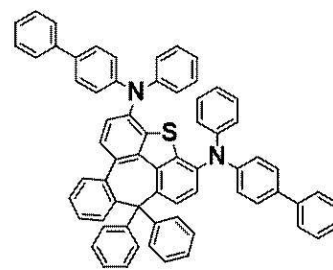
78



79



80



81

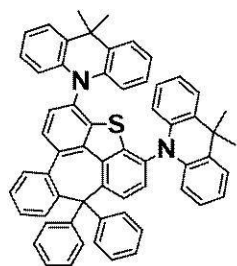
10

20

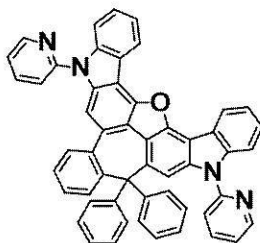
30

40

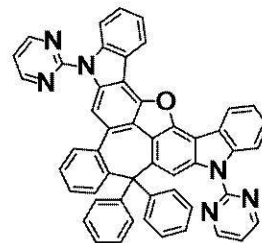
50



82

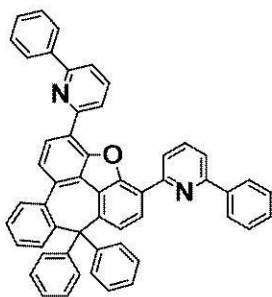


83

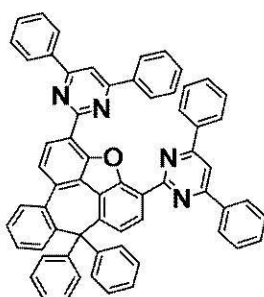


84

10



85

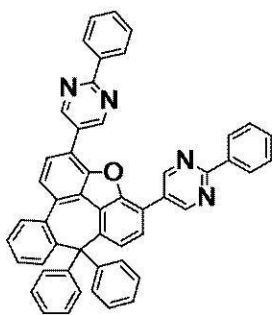


86

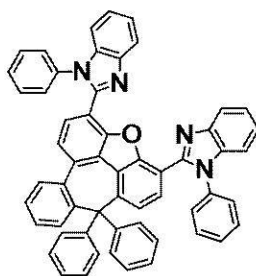


87

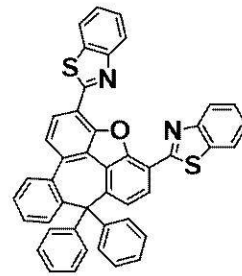
20



88



89

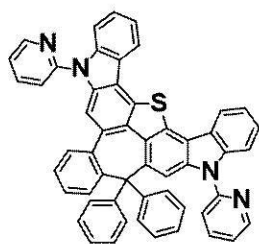


90

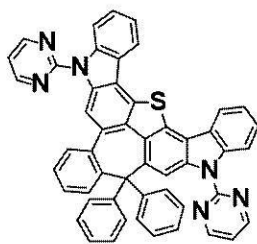
30

40

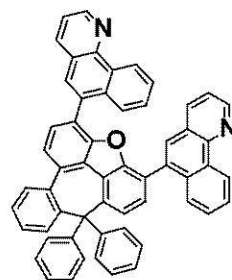
50



91



92



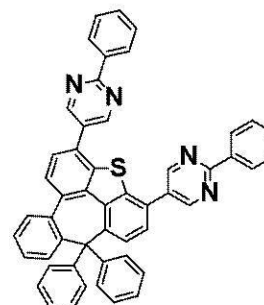
93



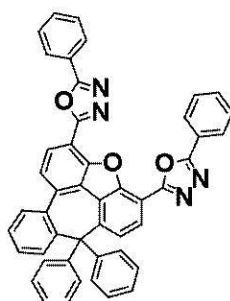
94



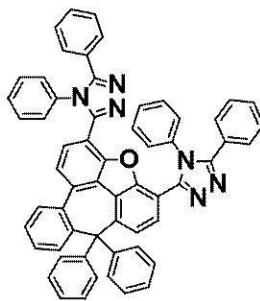
95



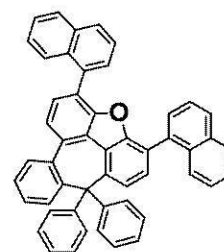
96



97



98



99

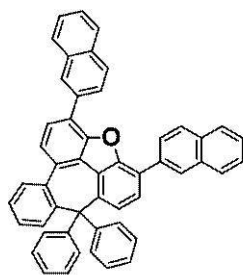
10

20

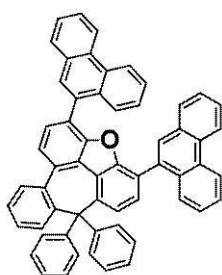
30

40

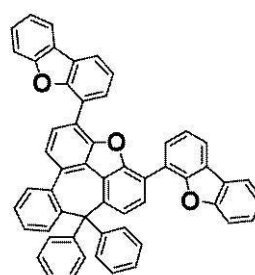
50



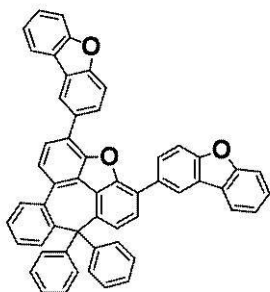
100



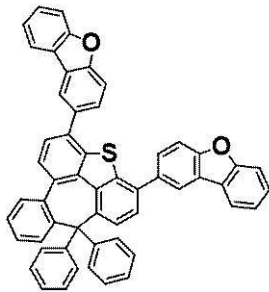
101



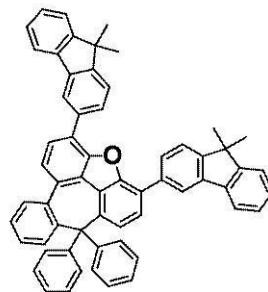
102



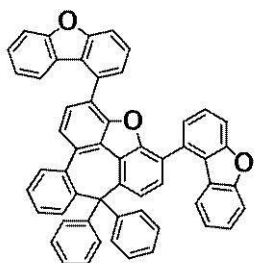
103



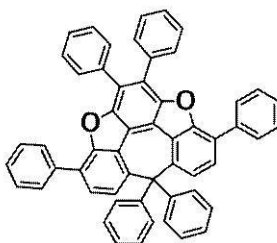
104



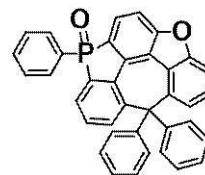
105



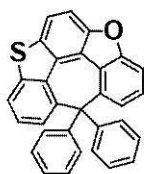
106



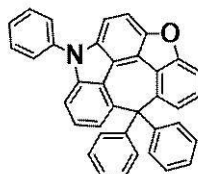
107



108



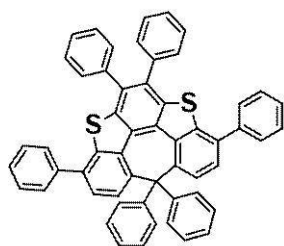
109



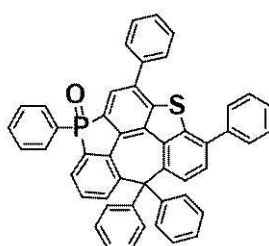
110



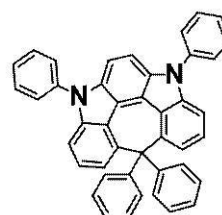
111



112



113



114

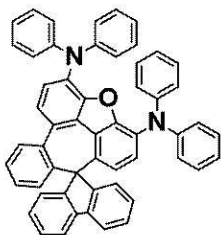
10

20

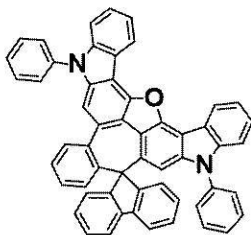
30

40

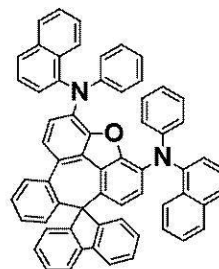
50



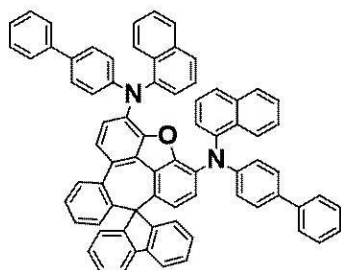
115



116



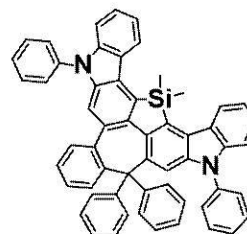
117



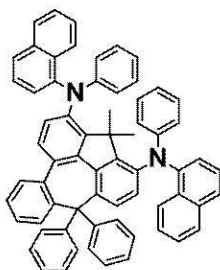
118



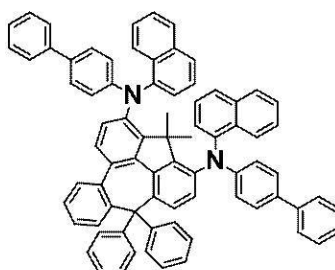
119



120



121



122

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、多環化合物及びこれを含む有機電界発光素子に係る。

【背景技術】

【0002】

近年、映像表示装置として、有機電界発光表示装置（Organic Electroluminescence Display）の開発が盛んになっている。有機電界発光表示装置は、液晶表示装置等とは異なり、第1電極及び第2電極から注入された正孔及び電子を発光層において再結合させることにより、発光層において有機化合物を含む発光材料を発光させて表示を実現する、いわゆる自発光型の表示装置である。

【0003】

有機電界発光素子としては、例えば、第1電極、第1電極上に配置された正孔輸送層、正孔輸送層上に配置された発光層、発光層上に配置された電子輸送層、及び電子輸送層上に配置された第2電極で構成された有機素子が公知となっている。第1電極からは、正孔が注入され、注入された正孔は、正孔輸送層を移動して発光層に注入される。一方、第2電極からは電子が注入され、注入された電子は、電子輸送層を移動して発光層に注入される。発光層に注入された正孔と電子とが再結合することによって、発光層内で励起子が生成される。有機電界発光素子は、励起子が基底状態へと遷移することによって発生するエネルギーを利用することにより発光する。なお、有機電界発光素子は、以上に説明した構成

に限定されることなく、様々な変更が可能である。

【０００４】

有機電界発光素子を表示装置に応用することにおいて、有機電界発光素子の高発光効率化及び長寿命化が求められており、これを安定的に実現できる有機電界発光素子用材料の開発が要求されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【０００５】

【文献】米国特許第８０１２６０７号明細書

米国特許第７７８１５７９号明細書

米国特許第７０１４９２５号明細書

特許第５７４７５５５号公報

韓国特許第１０－０７１８１０４号公報

韓国特許第１０－１４７３３０６号公報

韓国公開特許第１０－２０１４－００９６３７２号公報

韓国公開特許第１０－２０１４－０１１９６４２号公報

韓国公開特許第１０－２０１５－００１９７２４号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【０００６】

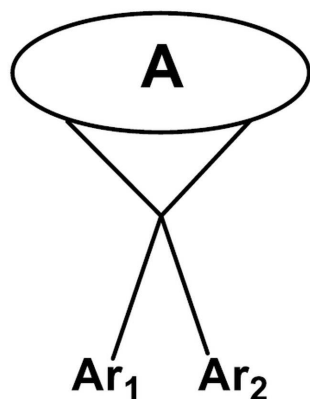
本発明の目的は、多環化合物及びこれを含む有機電界発光素子を提供することにある。より詳細には、本発明の目的は、発光効率及び／又は寿命を向上させることができる多環化合物及びこれを含む有機電界発光素子を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【０００７】

本発明の一実施形態は、下記の化学式（１）で示される多環化合物である。

【化１】



(1)

【０００８】

化学式（１）において、 Ar_1 及び Ar_2 は、各々独立に置換若しくは無置換の環形成炭素数６以上３０以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数２以上３０以下のヘテロアリール基であるか、或いは互いに結合して環を形成することができ、 A は、下記の化学式（２－１）又は化学式（２－２）で示され、

10

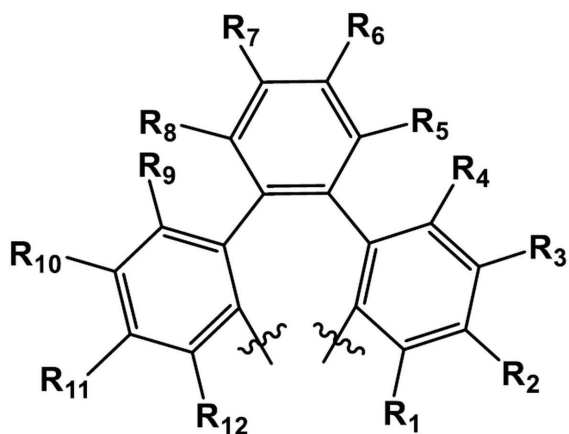
20

30

40

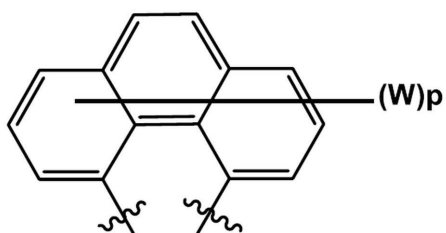
50

【化 2】



(2 - 1)

【化 3】



(2 - 2)

化学式 (2 - 1) において、 $R_1 \sim R_{12}$ は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数 1 以上 20 以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 以上 30 以下のヘテロアリール基であるか、或いは隣接する基と互いに結合して環を形成し、化学式 (2 - 2) において、 W は、水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数 1 以上 20 以下のアルキル基、置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 60 以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 5 以上 60 以下のヘテロアリール基であり、 p は、0 以上 8 以下の整数であり、 p が 2 以上である場合、複数の W は、互いに同一であるか、或いは異なる。

【 0 0 0 9 】

化学式 (1) は、下記の化学式 (3) で示されてもよい。

10

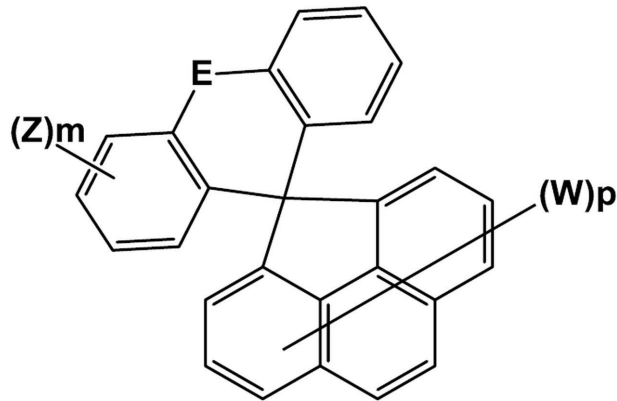
20

30

40

50

【化 4】

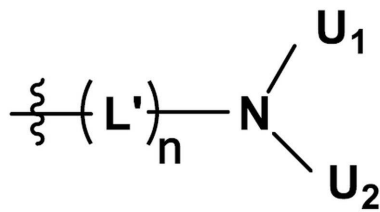


(3)

【 0 0 1 0 】

化学式 (3) において、W 及び p は、前述と同様であり、E は O、S 又は N R ' であり、m は、0 又は 1 であり、Z 及び R ' は、各々独立に下記の化学式 (4) で示され、

【化 5】



(4)

化学式 (4) において、U₁ 及び U₂ は、各々独立に置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 以上 30 以下のヘテロアリール基であり、L' は、置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリーレン基であり、n は、各々独立に 0 又は 1 であり、E が N R ' であるとき、m は、0 であり、E が O 又は S であるとき、m は、1 である。

【 0 0 1 1 】

化学式 (3) は、下記の化学式 (5) で示されてもよい。

10

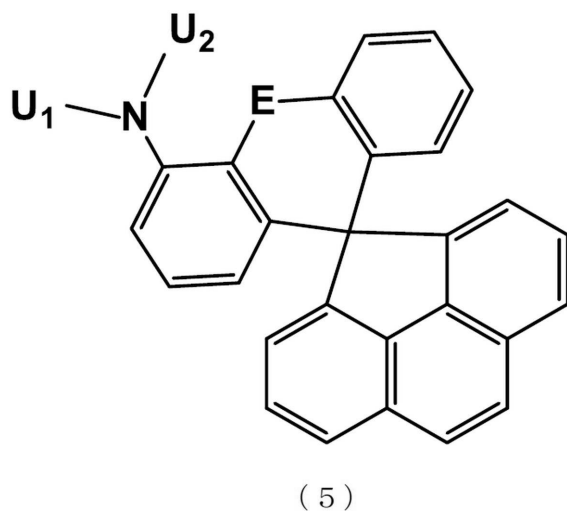
20

30

40

50

【化 6】



化学式 (5) において、E、U₁及びU₂は、前述と同様である。

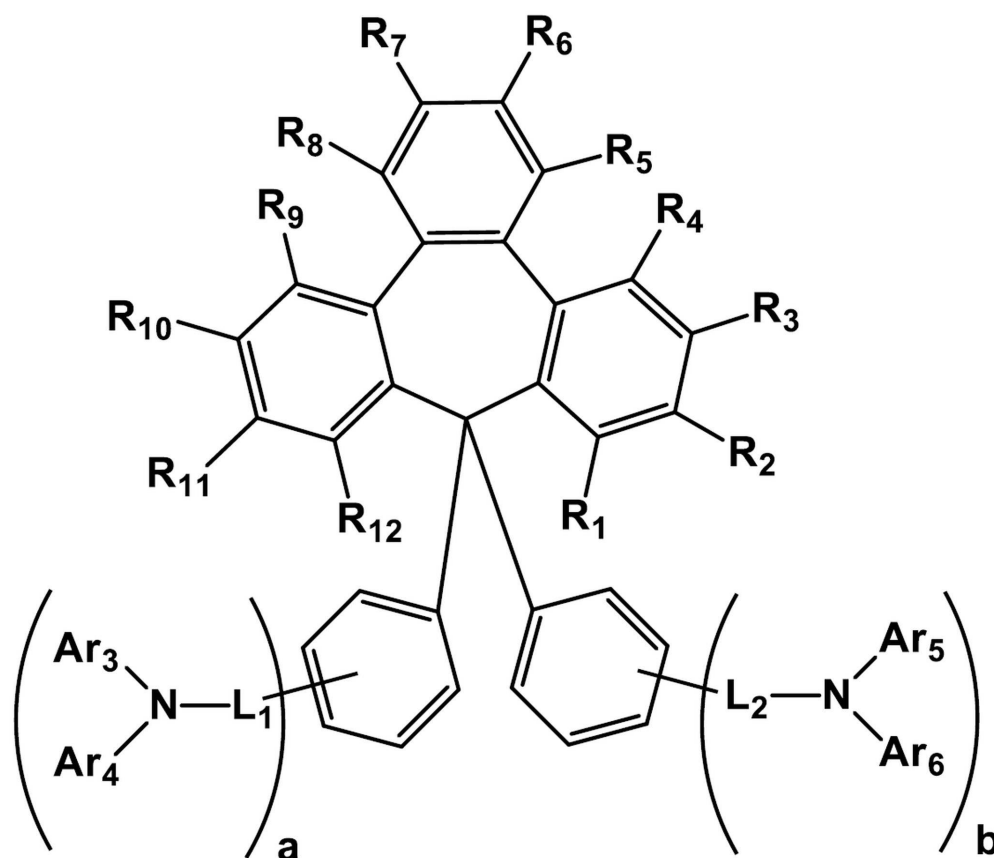
【 0 0 1 2 】

化学式 (1) において、Aは、化学式 (2 - 1) で示され、A r₁及びA r₂は、各々独立に置換若しくは無置換のフェニル基、置換若しくは無置換のアントラセニル基、置換若しくは無置換のピレニル基、置換若しくは無置換のフェナントリル基、置換若しくは無置換のクリセニル基、置換若しくは無置換のトリフェニレン基、置換若しくは無置換のカルバゾリル基、又は置換若しくは無置換のピリジル基であるか、或いは互いに結合して環を形成する。

【 0 0 1 3 】

化学式 (1) は、下記の化学式 (6) で示されてもよい。

【化 7】



(6)

【0014】

化学式(6)において、 L_1 及び L_2 は、各々独立に直接結合(direct linkage)、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリーレン基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリーレン基であり、 $Ar_3 \sim Ar_6$ は、各々独立に水素、重水素、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、 a 及び b は、各々独立に0又は1であり、 $a + b \neq 0$ であり、 $R_1 \sim R_{12}$ は、前述と同様である。

【0015】

化学式(1)は、下記の化学式(7)で示されてもよい。

10

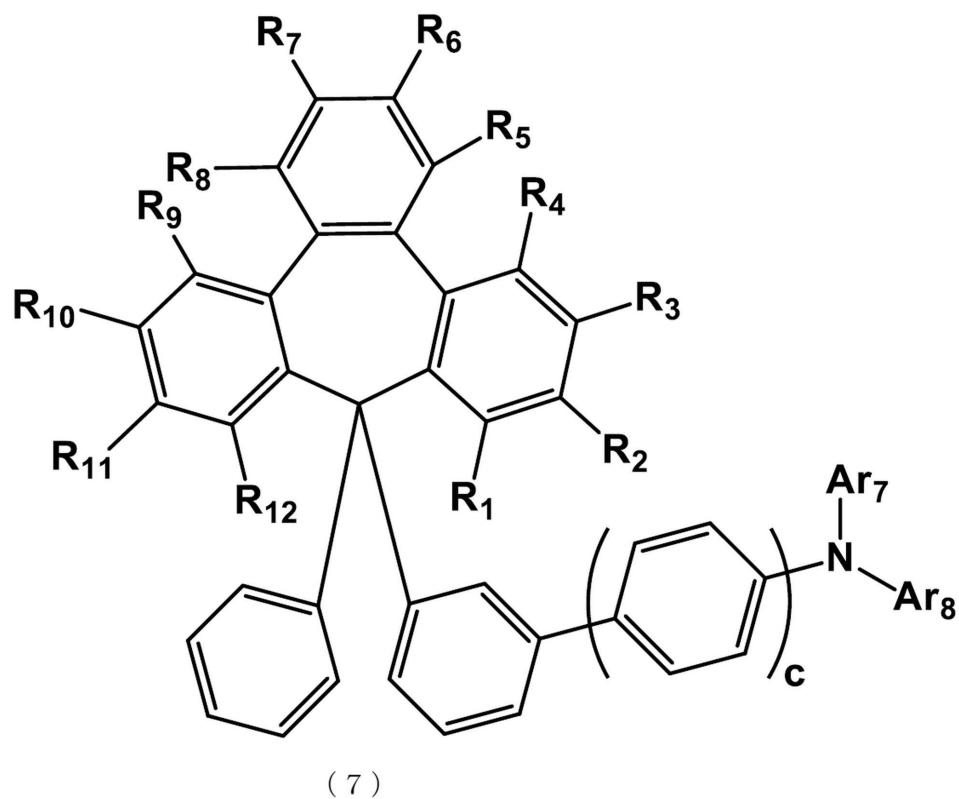
20

30

40

50

【化 8】



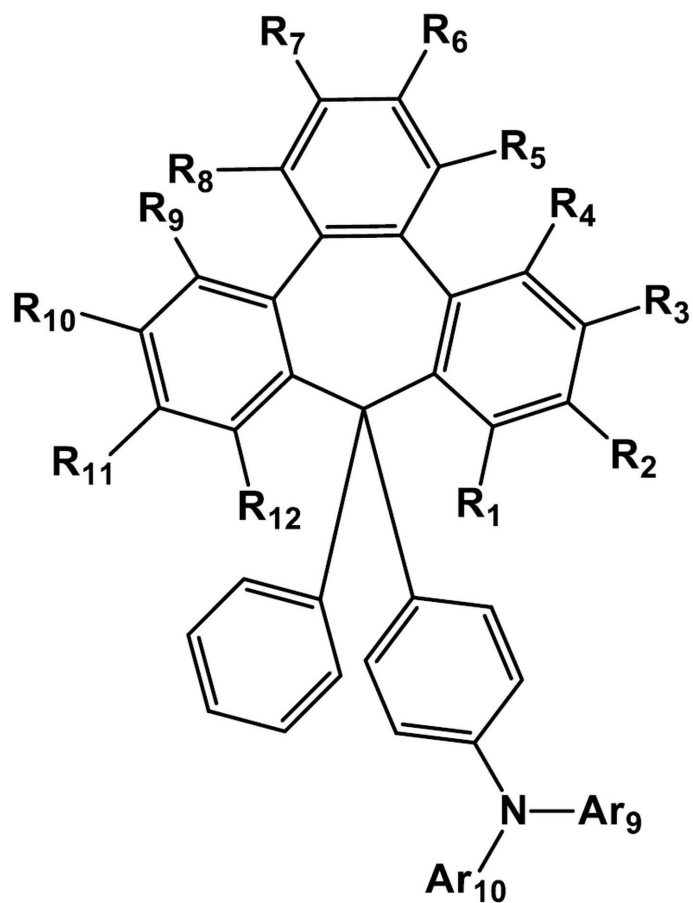
【 0 0 1 6 】

化学式 (7) において、 Ar_7 及び Ar_8 は、各々独立に水素、重水素、置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 以上 30 以下のヘテロアリール基であり、 c は、0 又は 1 であり、 $R_1 \sim R_{12}$ は、前述と同様である。

【 0 0 1 7 】

化学式 (1) は、下記の化学式 (8) で示されてもよい。

【化 9】



(8)

【0018】

化学式(8)において、Ar₉及びAr₁₀は、各々独立に水素、重水素、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、R₁～R₁₂は、前述と同様である。

【0019】

化学式(1)は、下記の化学式(9)で示されてもよい。

10

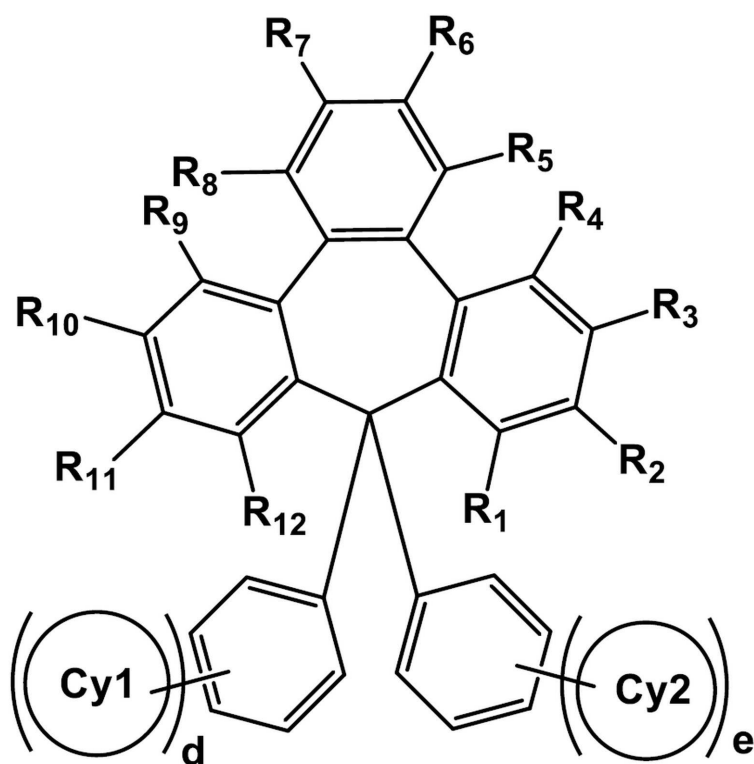
20

30

40

50

【化 10】



(9)

【0020】

化学式(9)において、Cy1及びCy2は、各々独立にヘテロ原子としてNを1以上3以下含む置換又は無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、d及びeは、各々独立に0又は1であり、 $d + e \neq 0$ であり、 $R_1 \sim R_{12}$ は、前述と同様である。

【0021】

化学式(1)は、下記の化学式(10)で示されてもよい。

10

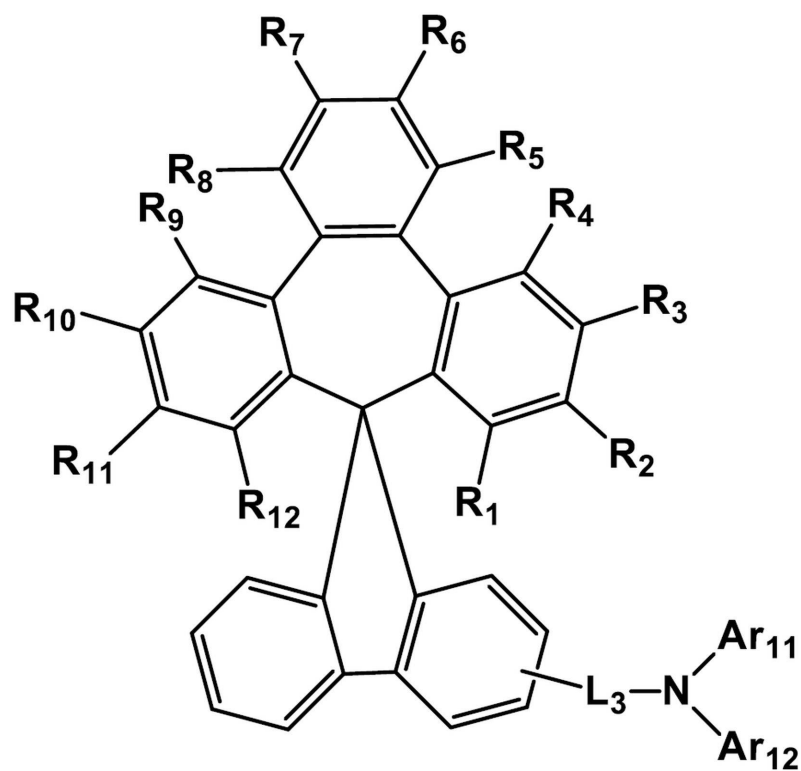
20

30

40

50

【化 1 1】



(1 0)

【 0 0 2 2 】

化学式 (1 0) において、Ar₁₁及びAr₁₂は、各々独立に水素、重水素、置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 3 0 以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 以上 3 0 以下のヘテロアリール基であり、L₃は、直接結合、置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 3 0 以下のアリーレン基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 以上 3 0 以下のヘテロアリーレン基であり、R₁～R₁₂は、前述と同様である。

【 0 0 2 3 】

化学式 (1) は、下記の化学式 (1 1) で示されてもよい。

10

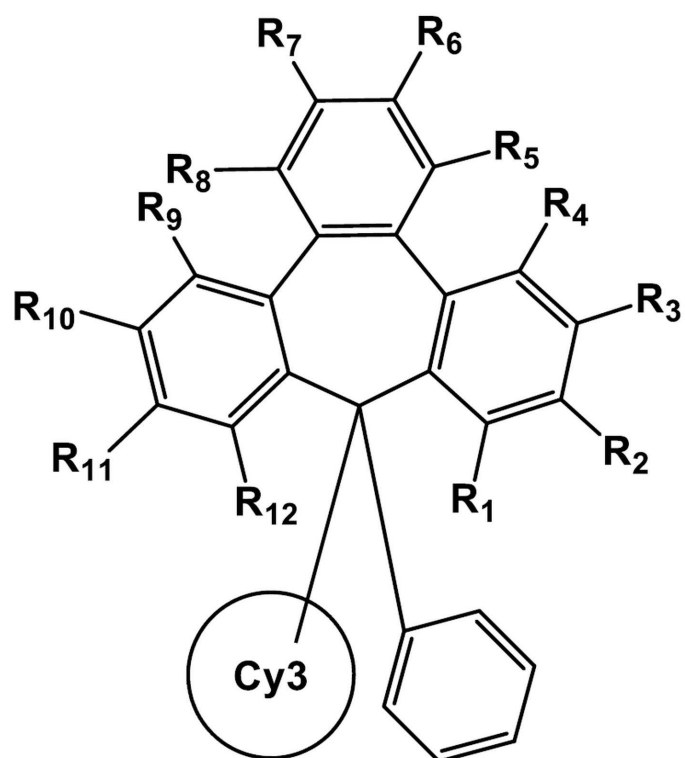
20

30

40

50

【化 1 2】



(1 1)

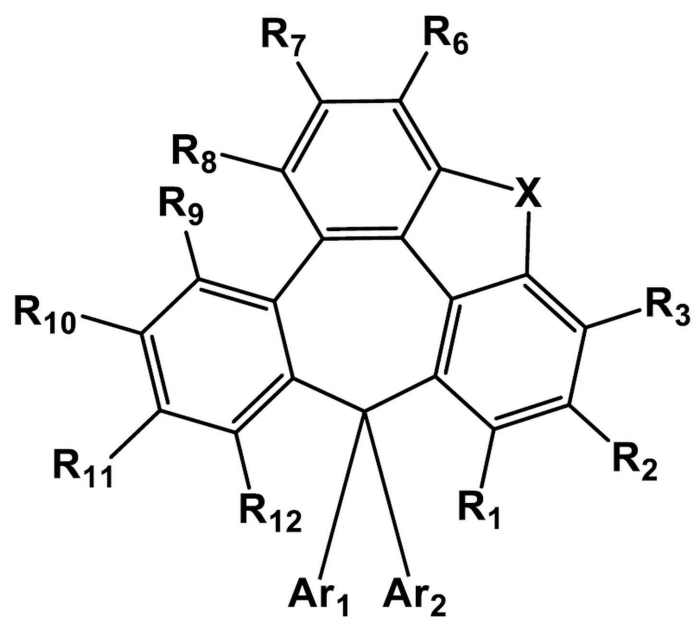
【 0 0 2 4】

化学式 (1 1) において、C y 3 は、置換若しくは無置換の 3 環又は 4 環のアリール基であり、R₁～R₁₂は、前述と同様である。

【 0 0 2 5】

化学式 (1) は、下記の化学式 (1 2) で示されてもよい。

【化 1 3】



(1 2)

10

20

30

40

50

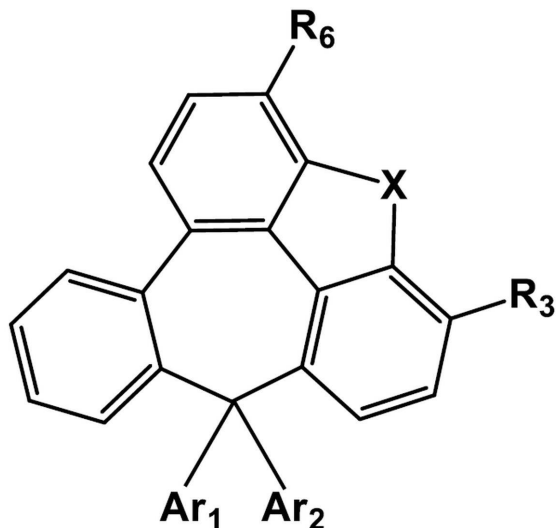
【0026】

化学式(12)において、Xは、O、S、NR₁₃、CR₁₄R₁₅又はSiR₁₆R₁₇であり、R₁₃～R₁₇は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、Ar₁、Ar₂、R₁～R₃及びR₆～R₁₂は、前述と同様である。

【0027】

化学式(1)は、下記の化学式(13)で示されてもよい。

【化14】



(13)

【0028】

化学式(13)において、Xは、O、S、NR₁₃、CR₁₄R₁₅又はSiR₁₆R₁₇であり、R₃及びR₆は、各々独立に置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、R₁₃～R₁₇は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、Ar₁及びAr₂は、前述と同様である。

【0029】

化学式(1)は、下記の化学式(14)で示されてもよい。

10

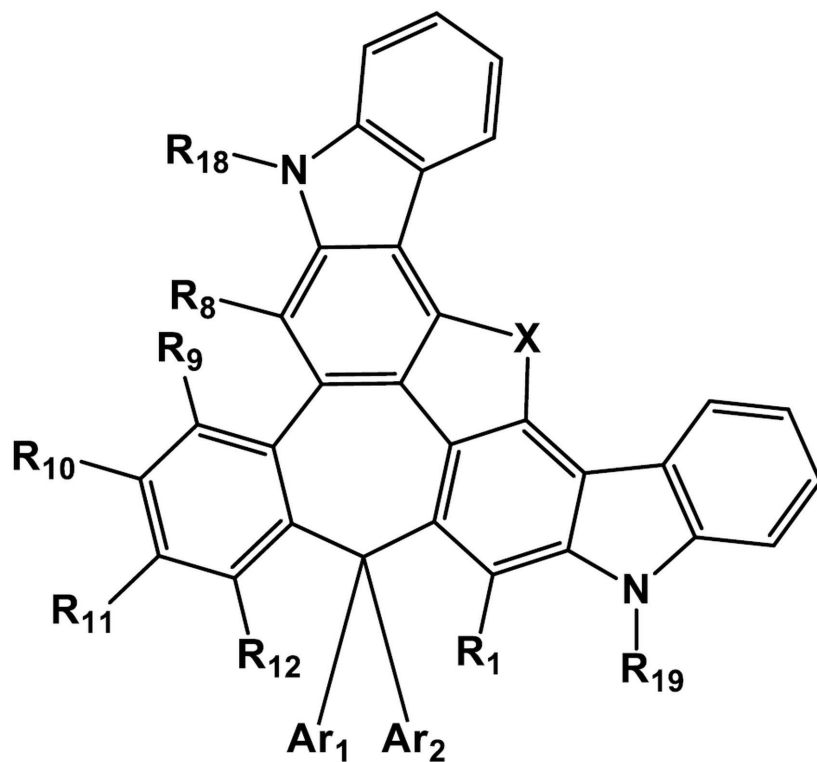
20

30

40

50

【化 1 5】



(1 4)

【 0 0 3 0 】

化学式 (1 4) において、Xは、O、S、NR₁₃、CR₁₄R₁₅又はSiR₁₆R₁₇であり、R₁₃～R₁₇は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、R₁₈及びR₁₉は、各々独立に水素、重水素、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、Ar₁、Ar₂、R₁及びR₈～R₁₂は、前述と同様である。

【 0 0 3 1 】

化学式 (1) は、下記の化学式 (1 5) で示されてもよい。

10

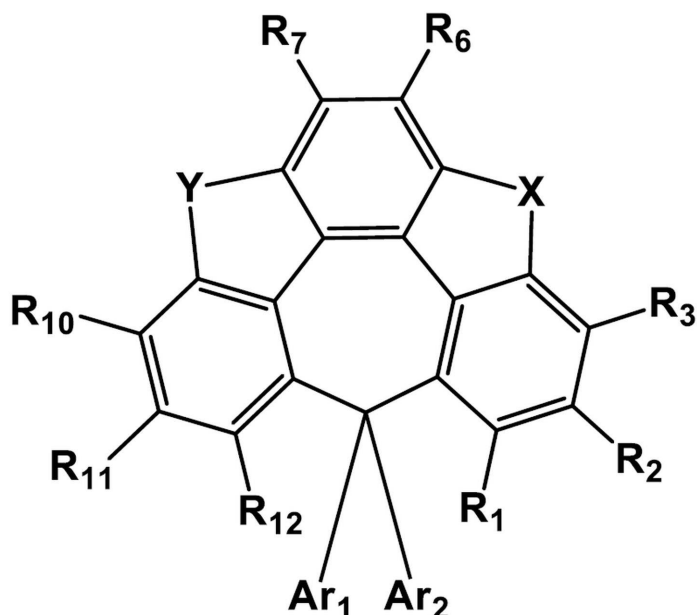
20

30

40

50

【化 16】



(15)

【0032】

化学式(15)において、Xは、O、S、NR₁₃、CR₁₄R₁₅又はSiR₁₆R₁₇であり、Yは、O、S、NR₂₀又は置換若しくは無置換のホスフィンオキシド基であり、R₁₃～R₁₇は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、R₂₀は、水素、重水素、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、Ar₁、Ar₂、R₁～R₃、R₆、R₇及びR₁₀～R₁₂は、前述と同様である。

【0033】

化学式(1)は、下記の化学式(16)で示されてもよい。

10

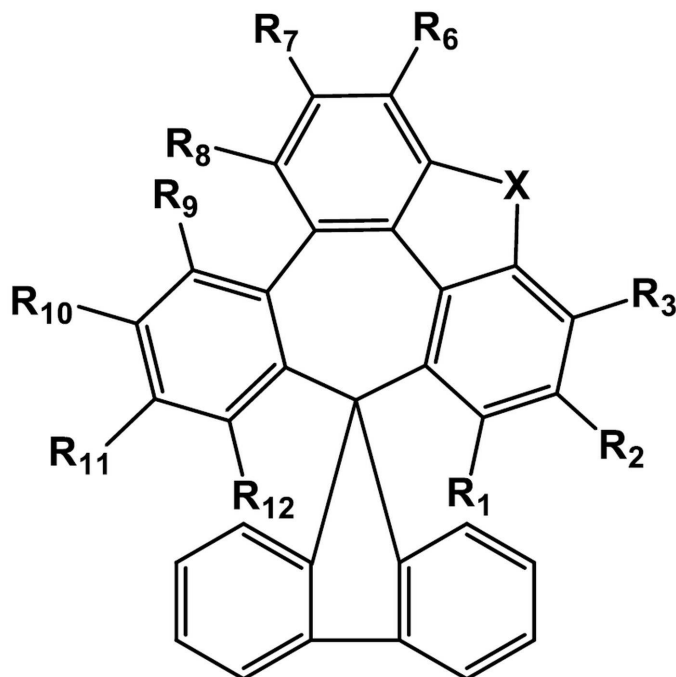
20

30

40

50

【化 17】



(16)

【0034】

化学式(16)において、Xは、O、S、NR₁₃、CR₁₄R₁₅又はSiR₁₆R₁₇であり、R₁₃～R₁₇は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、R₁～R₃及びR₆～R₁₂は、前述と同様である。

【0035】

本発明の一実施形態は、第1電極、第1電極上に配置された正孔輸送領域、正孔輸送領域上に配置された発光層、発光層上に配置された電子輸送領域及び電子輸送領域上に配置された第2電極を含み、正孔輸送領域及び発光層の中の少なくとも1つは、前述した本発明の一実施形態に係る多環化合物を含む有機電界発光素子を提供する。

【発明の効果】

【0036】

本発明の一実施形態に係る化合物は、有機電界発光素子用の材料として使用することができる。本発明の一実施形態に係る化合物は、有機電界発光素子の発光効率を向上させることができる。本発明の一実施形態に係る化合物は、有機電界発光素子の寿命を向上させることができる。

【0037】

本発明の一実施形態に係る有機電界発光素子は、発光効率の向上を実現することができる。本発明の一実施形態に係る有機電界発光素子は、寿命の向上を実現することができる。

【図面の簡単な説明】

【0038】

【図1】本発明の一実施形態に係る有機電界発光素子を概略的に示した断面図である。

【図2】本発明の一実施形態に係る有機電界発光素子を概略的に示した断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0039】

以上、本発明の目的、他の目的、特徴及び長所は、添付された図面及び以下の望ましい実施形態を通じて容易に理解されるべきである。しかし、本発明は、ここで説明される実施形態に限定されることなく、他の形態に具体化されることもあり得る。むしろ、ここで紹介される実施形態は、通常の技術者に本発明の思想を十分に伝達するため、提供されるものである。

【0040】

各図面を説明する際は、類似の参照符号を類似の構成要素に対して使用した。添付された図面において、構造物の寸法は、本発明の明確性のために実際より拡大して図示したものである。第1、第2等の用語は、多様な構成要素を説明するために使用されるが、前記構成要素は、前記用語によって限定されてはならない。前記用語は、1つの構成要素を他の構成要素から区別する目的にのみ使用される。例えば、本発明の権利範囲を逸脱することなく、第1構成要素を、第2構成要素と称し、同様に、第2構成要素も第1構成要素と称することができる。単数の表現は、文脈上明確に異なる表現をしない限り、複数の表現を含む。

10

【0041】

本明細書で、“含む”又は“有する”等の用語は、明細書上に記載された特徴、数字、段階、動作、構成要素、部品又はこれらを組合せたものが存在することを示し、1つ又はそれ以上の他の特徴や数字、段階、動作、構成要素、部分又はこれらを組合せたものの存在又は付加可能性を予め排除しないものと理解されなければならない。また、層、膜、領域、板等の部分が他の部分の“上に”あるとする場合、これは、他の部分の“直ちに上に”ある場合のみでなく、その中間にその他の部分がある場合をも含む。反対に、層、膜、領域、板等の部分が他の部分の“下に”あるとする場合、これは、他の部分の“直ちに下に”ある場合のみでなく、その中間にその他の部分がある場合をも含む。

20

【0042】

本明細書において、 は、結合する位置を意味する。

【0043】

本明細書において、“置換又は無置換の”は、重水素、ハロゲン基、ニトリル基、ニトロ基、アミノ基、シリル基、ホウ素基、ホスフィンオキシド基、アルキル基、アルケニル基、アリール基及びヘテロ環基からなる群のうち、選択される1つ以上の置換基で置換又は無置換のものを意味することができる。また、例示された置換基の各々は、置換又は無置換のものであってもよい。例えば、ビフェニル基は、アリール基として解釈されてもよく、フェニル基で置換されたフェニル基として解釈されてもよい。

30

【0044】

本明細書において、“隣接する基と互いに結合して環を形成する”とは、隣接する基と互いに結合して置換若しくは無置換の炭化水素環、又は置換若しくは無置換のヘテロ環を形成することを意味する。炭化水素環は、脂肪族炭化水素環及び芳香族炭化水素環を含む。ヘテロ環は、脂肪族ヘテロ環及び芳香族ヘテロ環を含む。炭化水素環及びヘテロ環は、単環又は多環である。また、隣接する基と互いに結合して形成された環は、他の環と結合してスピロ構造を形成するものであってもよい。

40

【0045】

本明細書において、“隣接する基”は、該当する置換基が置換された原子と直接結合した原子に置換された置換基、該当する置換基が置換された原子に置換された他の置換基又は該当する置換基と立体構造的に最も隣接する置換基を意味する。例えば、1、2-ジメチルベンゼンで2個のメチル基は、互いに“隣接する基”に解釈されることができ、1、1-ジエチルシクロペンテンで2個のエチル基は、互いに“隣接する基”として解釈される。

【0046】

本明細書において、ハロゲン基の例としては、フッ素、塩素、臭素、又はヨウ化物がある。

50

【0047】

本明細書において、アルキル基は、直鎖、分岐鎖、又は環形である。アルキル基の炭素数は、1以上30以下、1以上20以下、1以上10以下、又は1以上6以下である。アルキル基の例としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、*t*-ブチル基、*i*-ブチル基、2-エチルブチル基、3、3-ジメチルブチル基、*n*-ペンチル基、*i*-ペンチル基、ネオペンチル基、*t*-ペンチル基、シクロペンチル基、1-メチルペンチル基、3-メチルペンチル基、2-エチルペンチル基、4-メチル-2-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、1-メチルヘキシル基、2-エチルヘキシル基、2-ブチルヘキシル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基、4-*t*-ブチルシクロヘキシル基、*n*-ペンチル基、1-メチルヘプチル基、2、2-ジメチルヘプチル基、2-エチルヘプチル基、2-ブチルヘプチル基、*n*-オクチル基、*t*-オクチル基、2-エチルオクチル基、2-ブチルオクチル基、2-ヘキシルオクチル基、3、7-ジメチルオクチル基、シクロオクチル基、*n*-ノニル基、*n*-デシル基、アダマンチル基、2-エチルデシル基、2-ブチルデシル基、2-ヘキシルデシル基、2-オクチルデシル基、*n*-ウンデシル基、*n*-ドデシル基、2-エチルドデシル基、2-ブチルドデシル基、2-ヘキシルドデシル基、2-オクチルドデシル基、*n*-トリデシル基、*n*-テトラデシル基、*n*-ペンタデシル基、*n*-ヘキサデシル基、2-エチルヘキサデシル基、2-ブチルヘキサデシル基、2-ヘキシルヘキサデシル基、2-オクチルヘキサデシル基、*n*-ヘプタデシル基、*n*-オクタデシル基、*n*-ノナデシル基、*n*-イコシル基、2-エチルイコシル基、2-ブチルイコシル基、2-ヘキシルイコシル基、2-オクチルイコシル基、*n*-ヘンイコシル基、*n*-ドコシル基、*n*-トリコシル基、*n*-テトラコシル基、*n*-ペンタコシル基、*n*-ヘキサコシル基、*n*-ヘプタコシル基、*n*-オクタコシル基、*n*-ノナコシル基、及び*n*-トリアコンチル基等を挙げるが、これらに限定されない。

10

20

【0048】

本明細書において、アリール基は、芳香族炭化水素環から誘導された任意の作用基又は置換基を意味する。アリール基は、単環式アリール基又は多環式アリール基である。アリール基の環形成炭素数は、6以上30以下又は6以上20以下であってもよい。アリール基の例としては、フェニル基、ナフチル基、フルオレニル基、アントラセニル基、フェナントリル基、ピフェニル基、ターフェニル基、クォーターフェニル基、キンキフェニル基、セクシフェニル基、トリフェニレン基、ピレニル基、ベンゾフルオランテニル基、クリセニル基等を例示することができるが、これらに限定されない。

30

【0049】

本明細書において、フルオレニル基は、置換されてもよく、置換基2つが互いに結合してスピロ構造を形成してもよい。

【0050】

本明細書において、ヘテロアリール基は、ヘテロ原子としてO、N、P、及びSの中で1個以上を含むヘテロアリール基である。ヘテロアリール基の環形成炭素数は、2以上30以下又は2以上20以下である。ヘテロアリール基の例としては、チオフェニル基、フラニル基、ピロール基、イミダゾリル基、チアゾリル基、オキサゾリル基、オキサジアゾリル基、トリアゾリル基、ピリジル基、ピピリジル基、ピリミジル基、トリアジニル基、アクリジニル基、ジヒドロアクリジニル基、ピリダジニル基、ピラジニル基、キノリル基、キナゾリニル基、キノキサリニル基、フェノキサジニル基、フタラジニル基、ピリドピリミジニル基、ピリドピラジニル基、ピリドインドリル基、ピラジノピラジニル基、イソキノリル基、インドリル基、カルバゾリル基、*N*-アリールカルバゾリル基、*N*-ヘテロアリールカルバゾリル基、*N*-アルキルカルバゾリル基、ベンゾキノリニル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾカルバゾリル基、ベンゾチオフェニル基、ジベンゾチオフェニル基、チエノチオフェニル基、ベンゾフラニル基、フェナントロリン基、チアゾリル基、イソオキサゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、ベンゾチアゾリル基、フェノチアジニル基及びジベンゾフラニル基等がある

40

50

が、これらに限定されない。本明細書において、アリーレン基は、2価基であることを除けば、前述したアリール基に関する説明が適用されることができる。

【0051】

本明細書において、ヘテロアリーレン基は、2価基であることを除けば、前述したアリール基に関する説明が適用される。

【0052】

本明細書において、シリル基は、アルキルシリル基及びアリールシリル基を含む。シリル基の例としては、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、セーブチルジメチルシリル基、ビニルジメチルシリル基、プロピルジメチルシリル基、トリフェニルシリル基、ジフェニルシリル基、フェニルシリル基等があるが、これらに限定されない。

10

【0053】

本明細書において、ハウ素基は、アルキルハウ素基及びアリールハウ素基を含む。ハウ素基の例としては、トリメチルハウ素基、トリエチルハウ素基、セーブチルジメチルハウ素基、トリフェニルハウ素基、ジフェニルハウ素基、フェニルハウ素基等があるが、これらに限定されない。

【0054】

本明細書において、アルケニル基は、直鎖又は分岐鎖である。炭素数は、特別に限定されないが、2以上30以下、2以上20以下、又は2以上10以下である。アルケニル基の例としては、ビニル基、1-ブテニル基、1-ペンテニル基、1、3-ブタジエニルアリール基、スチレニル基、スチルベニル基等があるが、これらに限定されない。

20

【0055】

本明細書において、アミノ基の炭素数は、特に限定されないが、1以上30以下である。アミノ基は、アルキルアミノ基及びアリールアミノ基を含む。アミノ基の例としては、メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、フェニルアミノ基、ナフチルアミノ基、9-メチルアントラセニルアミノ基、トリフェニルアミノ基等があるが、これらに限定されない。

【0056】

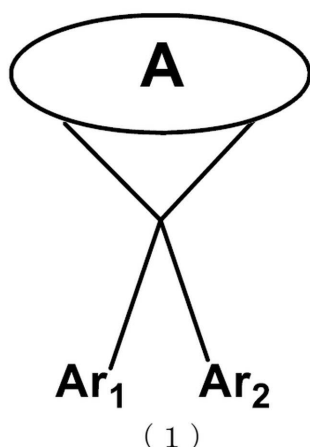
以下では、本発明の一実施形態に係る多環化合物について説明する。

【0057】

本発明の一実施形態に係る多環化合物は、下記の化学式(1)で示される。

【化18】

30



40

【0058】

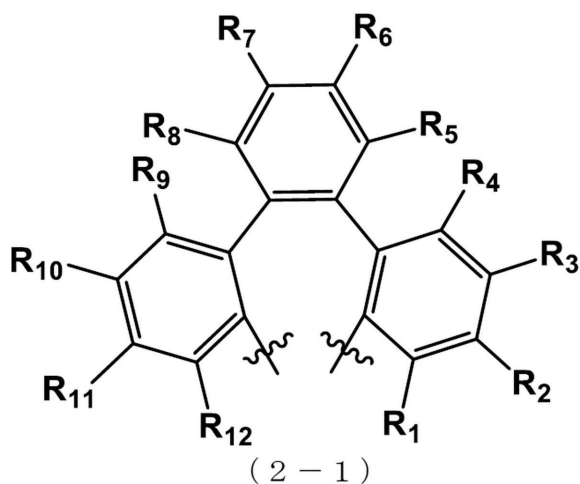
化学式(1)において、Ar₁及びAr₂は、各々独立に置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であるか、或いは互いに結合して環を形成してもよい。

【0059】

化学式(1)において、Aは、炭素数14以上の置換又は無置換の置換基である。具体的には、Aは、下記の化学式(2-1)又は化学式(2-2)で示すことができる。

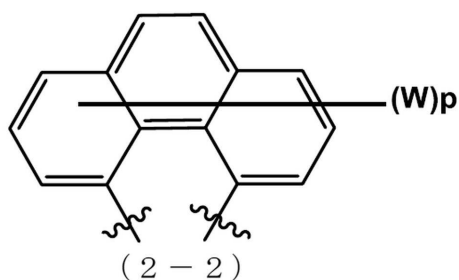
50

【化 19】



10

【化 20】



20

【0060】

化学式 (2-1) において、 $R_1 \sim R_{12}$ は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換又は無置換の炭素数 1 以上 20 以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 以上 30 以下のヘテロアリール基であるか、或いは隣接する基と互いに結合して環を形成してもよく、化学式 (2-2) において、 W は、水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数 1 以上 20 以下のアルキル基、置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 60 以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 5 以上 60 以下のヘテロアリール基であり、 p は、0 以上 8 以下の整数であり、 p が 2 以上である場合、複数の W は、互いに同一であるか、或いは異なる。

30

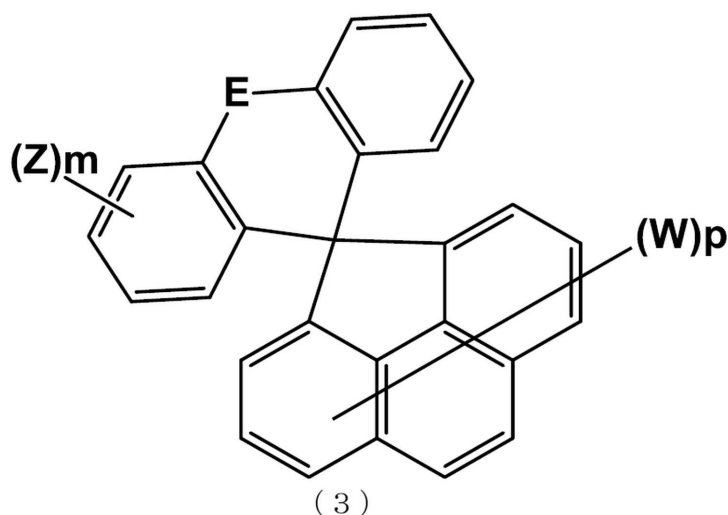
【0061】

化学式 (1) において、 A は、化学式 (2-2) で示されてもよい。化学式 (1) において、 A は、化学式 (2-2) で示され、 Ar_1 及び Ar_2 は、互いに結合してヘテロ環を形成してもよい。例えば、化学式 (1) は、下記の化学式 (3) で示すことができる。

40

50

【化 2 1】

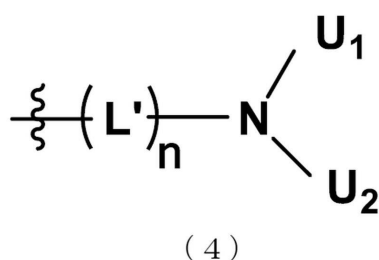


10

【 0 0 6 2】

化学式 (3) において、W 及び p は、前述と同様であり、E は、O、S 又は NR' であり、m は、0 又は 1 であり、Z 及び R' は、各々独立に下記の化学式 (4) で示される。

【化 2 2】



20

【 0 0 6 3】

化学式 (4) において、 U_1 及び U_2 は、各々独立に置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 以上 30 以下のヘテロアリール基であり、 L' は、置換又は無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリーレン基であり、n は、各々独立に 0 又は 1 であり、E が NR' であるとき、m は、0 であり、E が O 又は S であるとき、m は、1 である。

30

【 0 0 6 4】

化学式 (3) で示される多環化合物は、窒素を含むアミノ化合物である。

【 0 0 6 5】

化学式 (2-2) において、p は、0 である。

【 0 0 6 6】

化学式 (4) において、 U_1 及び U_2 は、各々独立に、置換若しくは無置換のフェニル基、置換若しくは無置換のナフチル基、置換若しくは無置換のビフェニル基、又は置換若しくは無置換のターフェニル基である。

40

【 0 0 6 7】

化学式 (4) において、 U_1 及び U_2 は、各々独立に、ナフチル基で置換若しくは無置換のフェニル基、置換若しくは無置換のナフチル基、置換若しくは無置換のビフェニル基、又は置換若しくは無置換のターフェニル基である。

【 0 0 6 8】

L' は、m-フェニレン基又は p-フェニレン基である。

【 0 0 6 9】

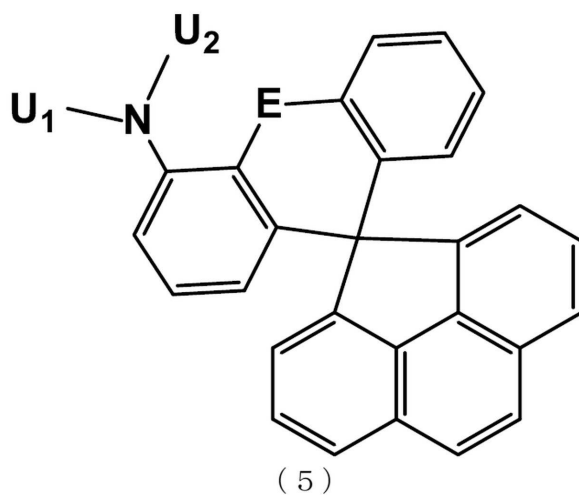
E が O 又は S であるとき、n は、0 又は 1 である。E が NR' であるとき、n は、0 又は 1 である。

50

【 0 0 7 0 】

化学式 (3) は、下記の化学式 (5) で示される。

【 化 2 3 】



10

【 0 0 7 1 】

化学式 (5) において、E、U₁及びU₂は、前述と同様である。

【 0 0 7 2 】

化学式 (1) で示される多環化合物は、下記の化合物 A - 1 ~ A - 2 3 で示された化合物の中から選択されるいずれか 1 つである。但し、これに限定されるものではない。

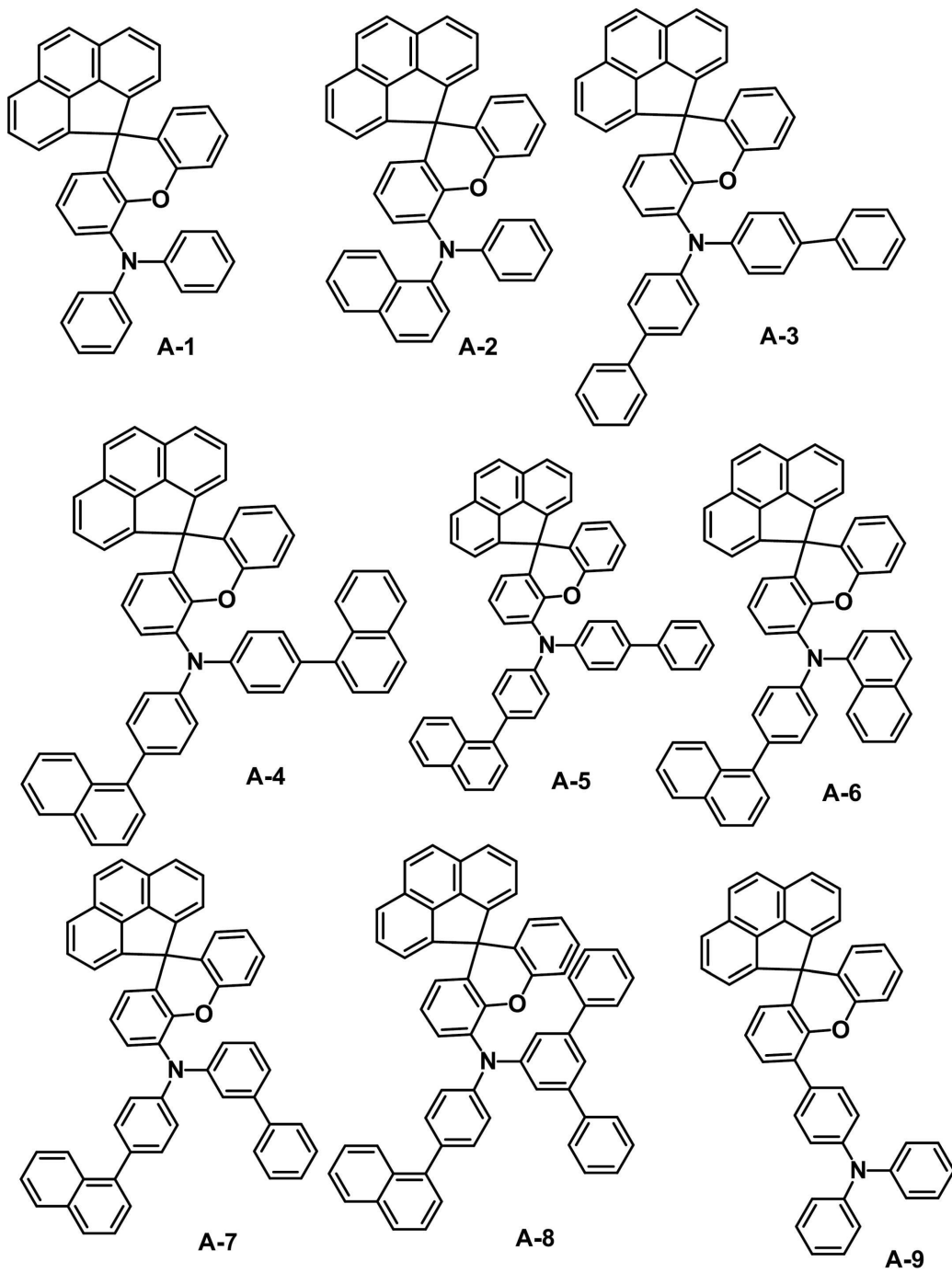
20

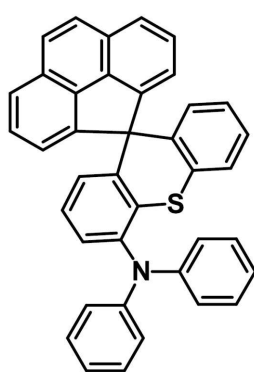
30

40

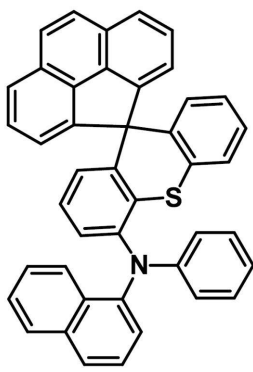
50

【化 2 4】

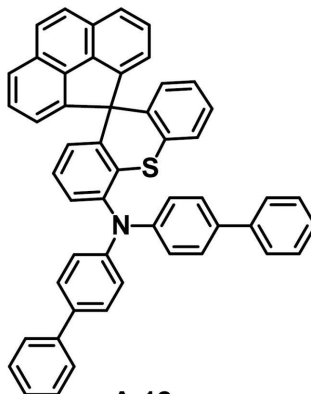




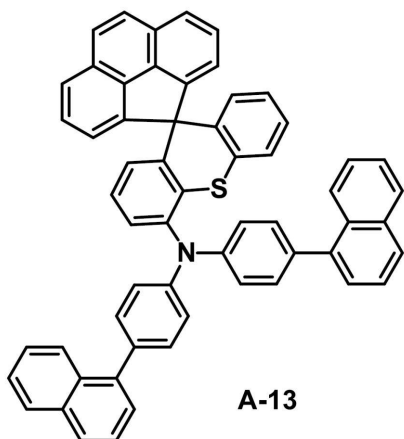
A-10



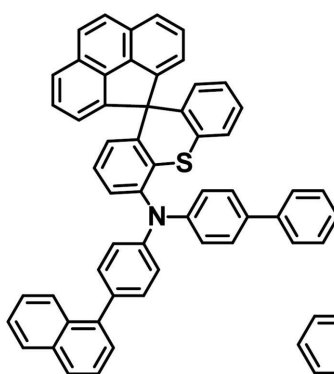
A-11



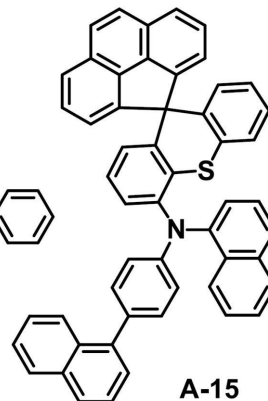
A-12



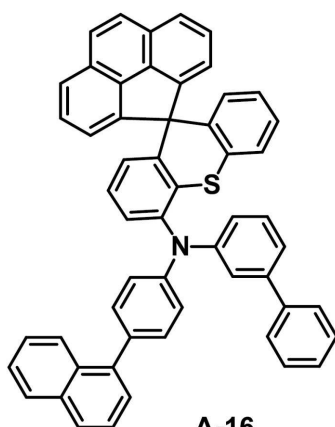
A-13



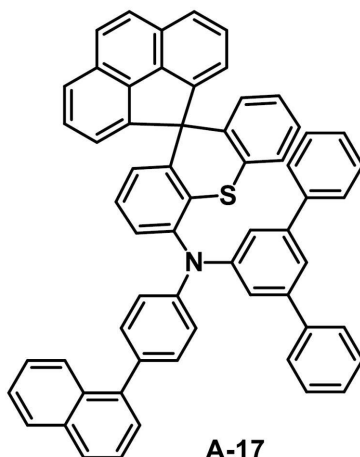
A-14



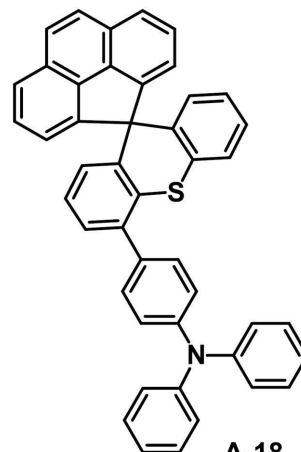
A-15



A-16



A-17



A-18

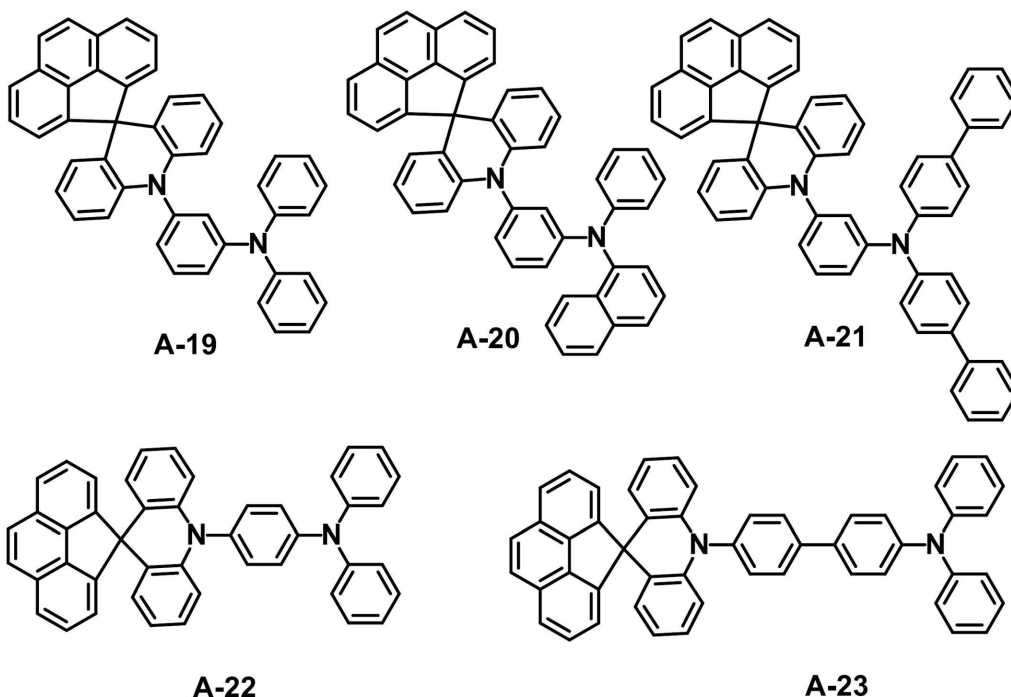
10

20

30

40

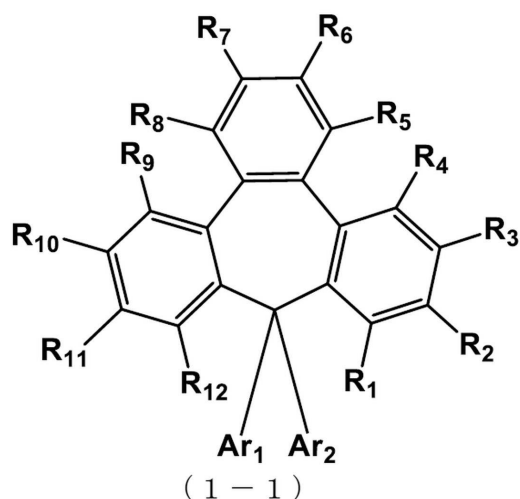
50



【0073】

化学式(1)において、Aは、化学式(2-1)で示される。この場合、化学式(1)は、下記の化学式(1-1)で示すことができる。

【化25】



【0074】

化学式(1)において、Aは、化学式(2-1)で示され、Ar₁及びAr₂は、各々独立に置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上20以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数3以上10以下のヘテロアリール基であるか、或いは互いに結合して環を形成してもよい。

【0075】

化学式(1)において、Aは、化学式(2-1)で示され、Ar₁及びAr₂は、各々独立に置換若しくは無置換のフェニル基、置換若しくは無置換のアントラセニル基、置換若しくは無置換のピレニル基、置換若しくは無置換のフェナントリル基、置換若しくは無置換のクリセニル基、置換若しくは無置換のトリフェニレン基、置換若しくは無置換のカルバゾリル基、又は置換若しくは無置換のピリジル基であるか、或いは互いに結合して環を形成してもよい。

【0076】

化学式（1）において、Aは、化学式（2-1）で示され、 Ar_1 及び Ar_2 の中の少なくとも1つは、置換又は無置換のフェニル基である。 Ar_1 及び Ar_2 は、各々独立に置換又は無置換のフェニル基である。 Ar_1 及び Ar_2 が互いに結合して置換又は無置換のフルオレニル基を形成してもよい。 Ar_1 及び Ar_2 の中の1つは、置換又は無置換のフェニル基であり、残る1つは、置換若しくは無置換の3環又は4環のアリール基である。

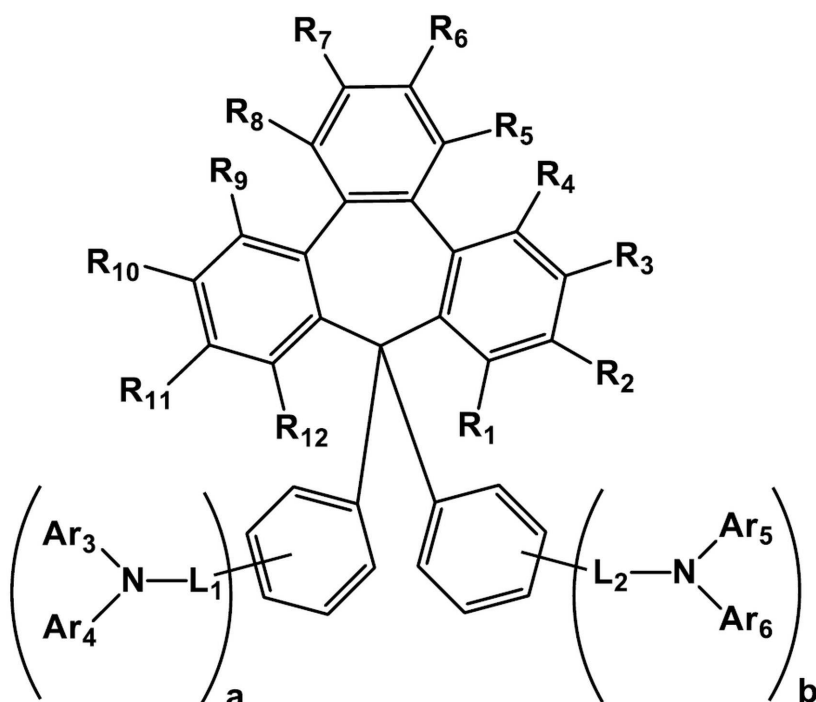
【0077】

化学式（1）において、Aは、化学式（2-1）で示され、 Ar_1 及び Ar_2 は、各々独立に置換又は無置換のピリジル基である。化学式（1）において、Aは、化学式（2-1）で示され、 Ar_1 及び Ar_2 は、各々独立に置換又は無置換のカルバゾリル基である。化学式（1）において、Aは、化学式（2-1）で示され、 Ar_1 及び Ar_2 は、各々独立にフェニル基で置換されたカルバゾリル基である。化学式（1）において、Aは、化学式（2-1）で示され、 Ar_1 及び Ar_2 は、各々独立にN-フェニルカルバゾリル基である。

【0078】

化学式（1）は、下記の化学式（6）で示すことができる。

【化26】



(6)

【0079】

化学式（6）において、 L_1 及び L_2 は、各々独立に直接結合、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリーレン基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリーレン基であり、 $Ar_3 \sim Ar_6$ は、各々独立に水素、重水素、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、a及びbは、各々独立に0又は1であり、 $a + b \neq 0$ であり、 $R_1 \sim R_{12}$ は、前述と同様である。

【0080】

本明細書において、直接結合は、例えば単結合を意味することができる。

【0081】

化学式（6）において、a及びbは、各々独立に1であり、 $Ar_3 \sim Ar_6$ は、各々独立に置換又は無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基である。即ち、化学式（1）の Ar_1 及び Ar_2 が各々直接又はリンカー（ L_1 又は L_2 ）を通じてアリールアミノ基で置換されたフェニル基である。

【0082】

化学式(6)において、 $Ar_3 \sim Ar_6$ は、各々独立に置換又は無置換の環形成炭素数6以上20以下のアリール基である。 $Ar_3 \sim Ar_6$ は、各々独立に無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基である。 $Ar_3 \sim Ar_6$ は、各々独立に置換若しくは無置換のフェニル基、置換若しくは無置換のビフェニル基、又は置換若しくは無置換のナフチル基である。

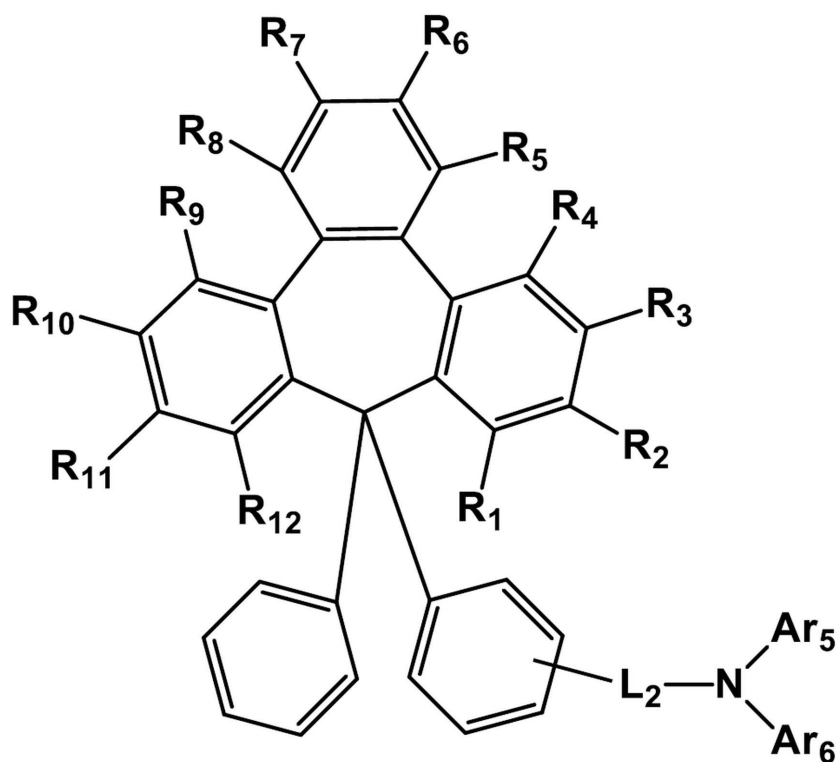
【0083】

化学式(1)のAは、化学式(2-1)で示され、化学式(1)の Ar_1 及び Ar_2 が互いに同一である。例えば、化学式(6)の $Ar_3 \sim Ar_6$ は、互いに同一である。その他の例として、 Ar_3 及び Ar_5 が互いに同一であり、 Ar_4 及び Ar_6 が互いに同一であり、この場合、 Ar_3 及び Ar_4 は、互いに異なり、 Ar_5 及び Ar_6 は、互いに異なる。但し、これに限定されるものではなく、 Ar_1 及び Ar_2 は、互いに異なることがあってもよい。

【0084】

化学式(6)において、 $a + b = 1$ である。例えば、化学式(6)は、下記の化学式(6-1)で示すことができる。

【化27】



(6-1)

【0085】

化学式(6-1)において、 $R_1 \sim R_{12}$ 、 L_2 、 Ar_5 及び Ar_6 は、前述と同様である。

【0086】

化学式(1)は、下記の化学式(7)で示すことができる。

10

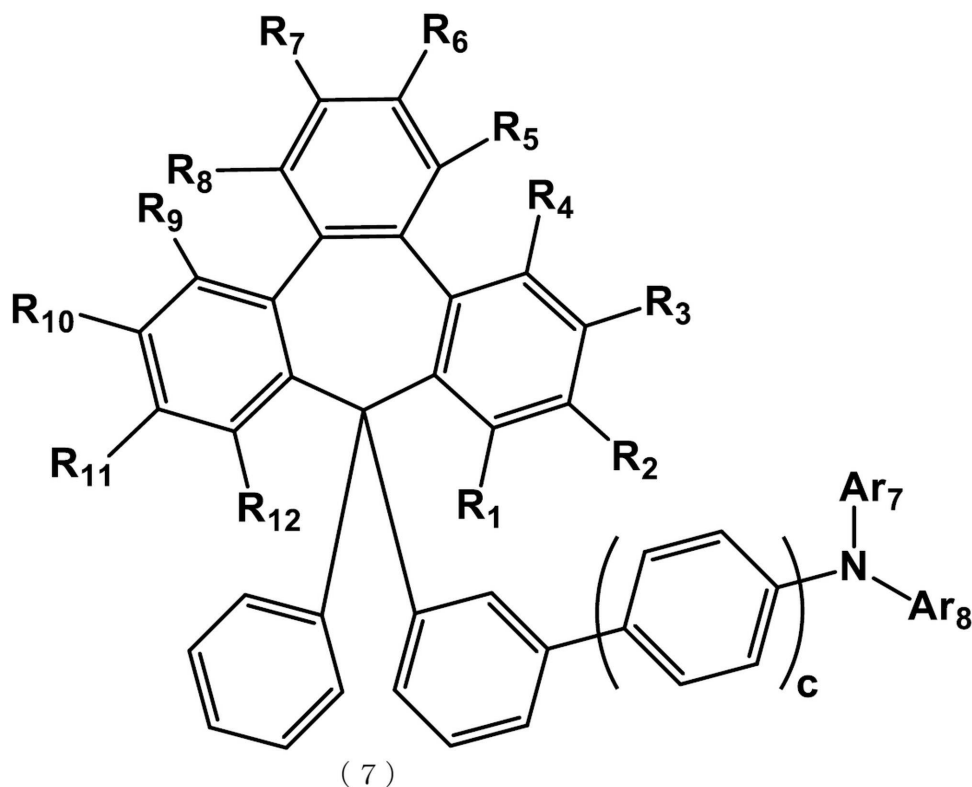
20

30

40

50

【化 28】



【0087】

化学式(7)において、 Ar_7 及び Ar_8 は、各々独立に水素、重水素、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、 c は、0又は1であり、 $R_1 \sim R_{12}$ は、前述と同様である。

【0088】

化学式(7)において、 Ar_7 及び Ar_8 は、各々独立に置換又は非置換された無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基である。 Ar_7 及び Ar_8 は、各々独立に置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基である。より具体的には、 Ar_7 及び Ar_8 は、各々独立に置換若しくは無置換のフェニル基、置換若しくは無置換のビフェニル基、又は置換若しくは無置換のナフチル基である。 Ar_7 及び Ar_8 は、各々独立にナフチル基で置換若しくは無置換のフェニル基、置換若しくは無置換のビフェニル基、又は置換若しくは無置換のナフチル基である。

【0089】

化学式(1)は、下記の化学式(8)で示すことができる。

10

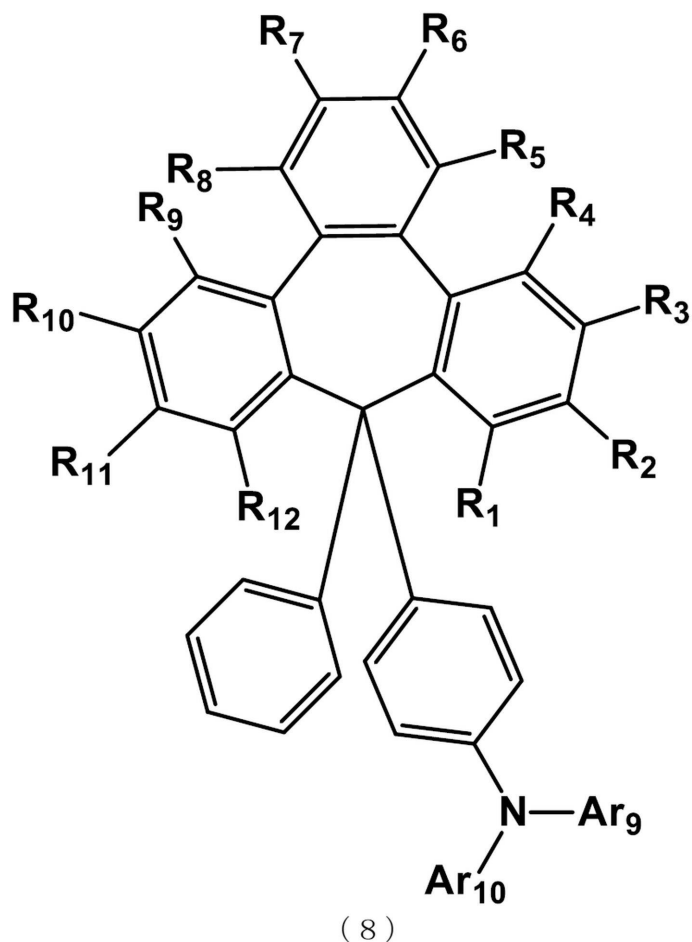
20

30

40

50

【化 2 9】



【 0 0 9 0 】

化学式 (8) において、 Ar_9 及び Ar_{10} は、各々独立に水素、重水素、置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 以上 30 以下のヘテロアリール基であり、 $R_1 \sim R_{12}$ は、前述と同様である。

【 0 0 9 1 】

化学式 (8) において、 Ar_9 及び Ar_{10} は、各々独立に置換又は無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリール基である。 Ar_9 及び Ar_{10} は、各々独立に置換又は無置換の環形成炭素数 2 以上 30 以下のヘテロアリール基である。より具体的には、 Ar_9 及び Ar_{10} は、各々独立に置換若しくは無置換のフェニル基、置換若しくは無置換のビフェニル基、又は置換若しくは無置換のナフチル基である。 Ar_9 及び Ar_{10} は、各々独立にナフチル基で置換若しくは無置換のフェニル基、置換若しくは無置換のビフェニル基、又は置換若しくは無置換のナフチル基である。

【 0 0 9 2 】

化学式 (1) は、下記の化学式 (9) で示すことができる。

10

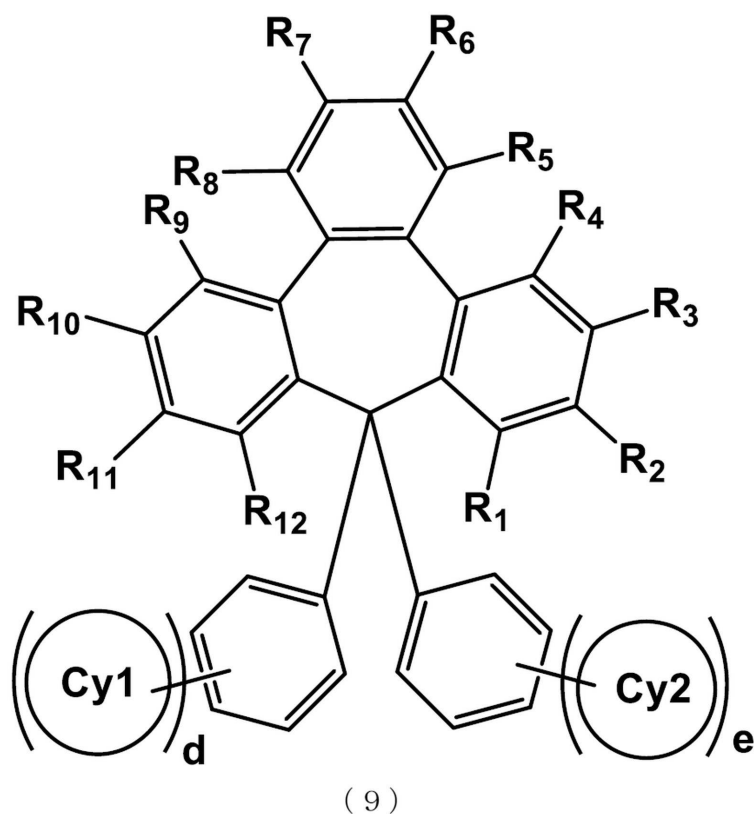
20

30

40

50

【化 3 0】



【 0 0 9 3 】

化学式 (9) において、C y 1 及び C y 2 は、各々独立にヘテロ原子に N を 1 以上 3 以下含む置換又は無置換の環形成炭素数 2 以上 3 0 以下のヘテロアリール基であり、d 及び e は、各々独立に 0 又は 1 であり、 $d + e \neq 0$ であり、 $R_1 \sim R_{12}$ は、前述と同様である。

【 0 0 9 4 】

化学式 (9) において、C y 1 及び C y 2 は、各々独立に置換若しくは無置換のピリジル基、置換若しくは無置換のピリミジル基、置換若しくは無置換のトリアジニル基、置換若しくは無置換のカルバゾリル基、置換若しくは無置換のピリドインドリル基、又は置換若しくは無置換のイソキノリル基である。

【 0 0 9 5 】

化学式 (9) において、C y 1 及び C y 2 は、各々独立に下記の構造式 (9 - 1) ~ (9 - 7) の中から選択されるいずれか 1 つである。

10

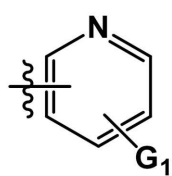
20

30

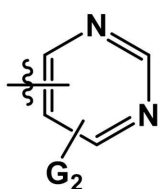
40

50

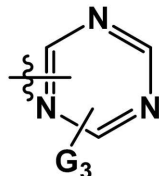
【化 3 1】



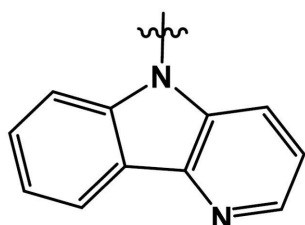
(9-1)



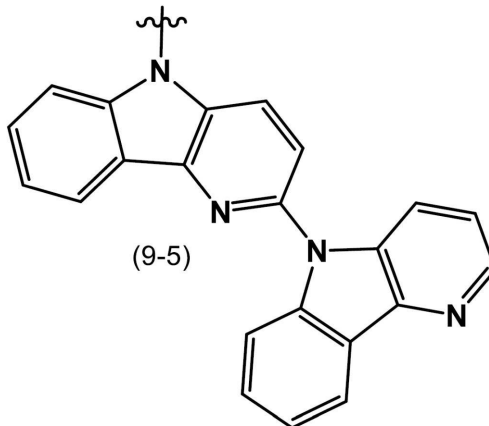
(9-2)



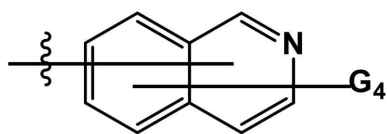
(9-3)



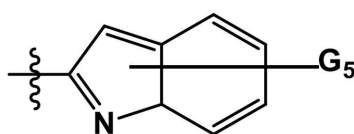
(9-4)



(9-5)



(9-6)



(9-7)

【0096】

G₁～G₅は、各々独立に水素、重水素、又は置換若しくは無置換の炭素数6以上30以下のアリール基である。G₁～G₅は、各々複数個である。G₁～G₅は、各々独立に水素、又は置換若しくは無置換のフェニル基である。

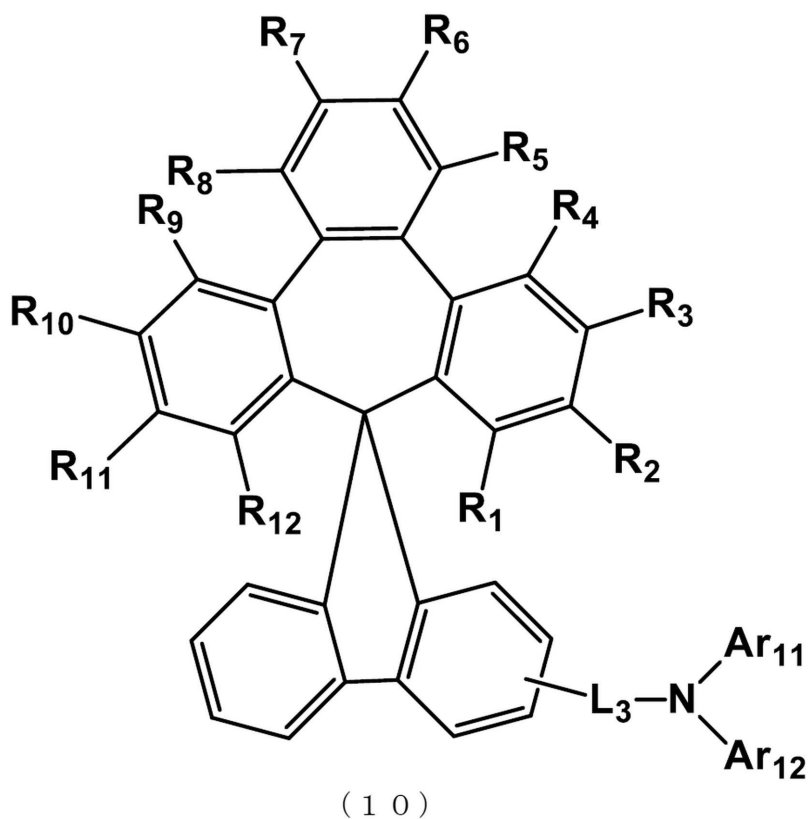
【0097】

化学式(9)において、d及びeが各々独立に1である。但し、これに限定されるものではなく、d+e=1であってもよい。

【0098】

前述したように、化学式(1)において、Ar₁及びAr₂は互いに結合して環を形成することができる。化学式(1)において、Aは、化学式(2-1)で示され、Ar₁及びAr₂は、互いに結合して置換又は無置換の炭化水素芳香族環を形成してもよい。Ar₁及びAr₂は、互いに結合して置換又は無置換のフルオレニル基を形成してもよい。例えば、化学式(1)は、下記の化学式(10)で示すことができる。

【化 3 2】



【0099】

化学式 (10) において、 Ar_{11} 及び Ar_{12} は、各々独立に水素、重水素、置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 以上 30 以下のヘテロアリール基であり、 L_3 は、直接結合、置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリーレン基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 以上 30 以下のヘテロアリーレン基であり、 $R_1 \sim R_{12}$ は、前述と同様である。

【0100】

化学式 (10) において、 Ar_{11} 及び Ar_{12} は、各々独立に置換又は無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリール基である。 Ar_{11} 及び Ar_{12} は、各々独立に置換又は無置換の環形成炭素数 2 以上 30 以下のヘテロアリール基である。より具体的には、 Ar_{11} 及び Ar_{12} は、各々独立に置換又は無置換のフェニル基、置換又は無置換のビフェニル基、又は置換若しくは無置換のナフチル基である。 Ar_{11} 及び Ar_{12} は、各々独立にナフチル基で置換又は無置換のフェニル基、置換又は無置換のビフェニル基、又は置換若しくは無置換のナフチル基である。

【0101】

化学式 (10) において、 L_3 は、直接結合、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリーレン基である。 L_3 は、直接結合、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 以上 30 以下のヘテロアリーレン基である。 L_3 は、直接結合、又は置換若しくは無置換のフェニレン基である。 L_3 は、直接結合、又は置換若しくは無置換の 1、4-フェニレン基である。

【0102】

化学式 (1) は、下記の化学式 (11) で示することができる。

10

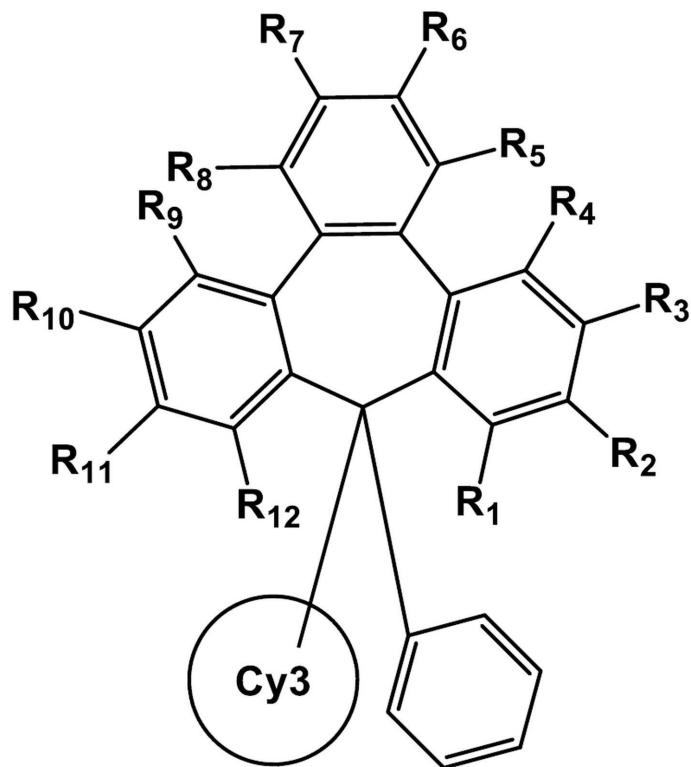
20

30

40

50

【化 3 3】



(1 1)

【 0 1 0 3 】

化学式 (1 1) において、C y 3 は、置換若しくは無置換の 3 環又は 4 環のアリール基であり、R₁～R₁₂は、前述と同様である。

【 0 1 0 4 】

C y 3 は、置換若しくは無置換のアントラセニル基、置換若しくは無置換のピレニル基、置換若しくは無置換のフェナントリル基、置換若しくは無置換のクリセニル基、又は置換若しくは無置換のトリフェニレン基である。C y 3 は、フェニル基、ナフチル基及びアリールアミノ基からなる群から選択された 1 以上の置換基で置換されたアントラセニル基である。C y 3 は、フェニル基、ニトリル基及びアリールアミノ基からなる群から選択された 1 以上の置換基で置換されたピレニル基である。C y 3 は、ナフチル基及びニトリル基からなる群から選択された 1 以上の置換基で置換されたフェナントリル基である。C y 3 は、フェニル基及びアリールアミノ基からなる群から選択された 1 以上の置換基で置換されたクリセニル基である。C y 3 は、ニトリル基で 1 以上置換又は無置換のトリフェニル基である。

【 0 1 0 5 】

化学式 (2 - 1) において、R₁～R₁₂は、各々水素である。但し、これに限定されるものではなく、R₁～R₁₂の中の少なくとも 1 つは、水素以外の置換基であってもよい。

【 0 1 0 6 】

前述したように、化学式 (2 - 1) において、R₁～R₁₂の中の一部は、隣接する基と互いに結合して環を形成してもよい。例えば、化学式 (1) は、下記の化学式 (1 2) で示すことができる。

10

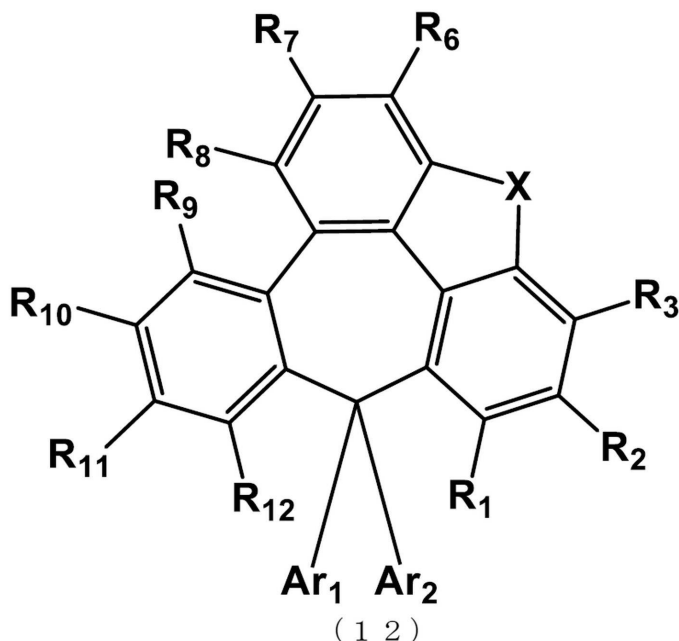
20

30

40

50

【化 3 4】



10

【 0 1 0 7 】

化学式 (1 2) において、Xは、O、S、NR₁₃、CR₁₄R₁₅又はSiR₁₆R₁₇であり、R₁₃～R₁₇は、各々独立に水素、重水素、ハロゲン基、シリル基、置換若しくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、Ar₁、Ar₂、R₁～R₃及びR₆～R₁₂は、前述と同様である。

20

【 0 1 0 8 】

Xは、O又はSである。Xは、Oである。Xは、Sである。

【 0 1 0 9 】

Xは、CR₁₄R₁₅又はSiR₁₆R₁₇であり、R₁₄～R₁₇は、各々独立に置換又は無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基であってもよい。Xは、CR₁₄R₁₅又はSiR₁₆R₁₇であり、R₁₄～R₁₇は、各々独立に置換又は無置換の炭素数1以上10以下のアルキル基であってもよい。Xは、CR₁₄R₁₅又はSiR₁₆R₁₇であり、R₁₄～R₁₇は、各々独立にメチル基又はエチル基であってもよい。Xは、CR₁₄R₁₅又はSiR₁₆R₁₇であり、R₁₄～R₁₇は、メチル基であってもよい。

30

【 0 1 1 0 】

Xは、NR₁₃である。Xは、NR₁₃であり、R₁₃は、水素、又は置換若しくは無置換の炭素数6以上30以下のアリール基であってもよい。Xは、NR₁₃であり、R₁₃は、水素、又は置換若しくは無置換の炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であってもよい。Xは、NR₁₃であり、R₁₃は、水素、又は置換若しくは無置換のフェニル基であってもよい。Xは、NR₁₃であり、R₁₃は、水素又は無置換のフェニル基である。

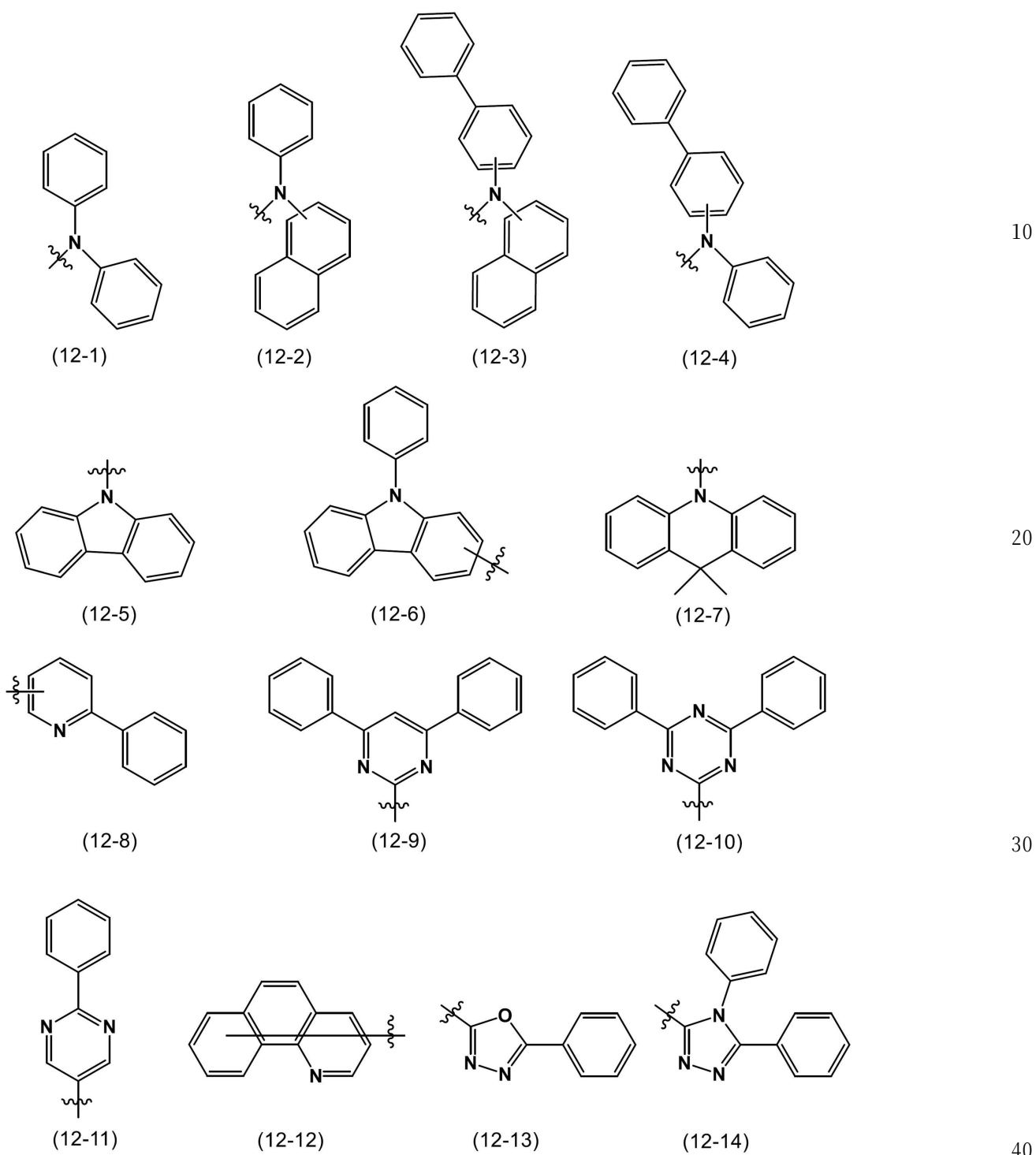
40

【 0 1 1 1 】

化学式 (1 2) において、R₁～R₃及びR₆～R₁₂は、各々独立に水素又は含窒素置換基である。例えば、化学式 (1 2) において、R₁～R₃及びR₆～R₁₂は、各々独立に水素又は下記の構造式 (1 2 - 1) ～ (1 2 - 1 4) の中のいずれか1つで示される。

50

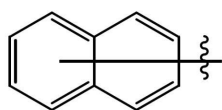
【化 3 5】



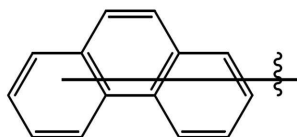
【0112】

但し、これに限定されるものではない。例えば、化学式(12)において、 $R_1 \sim R_3$ 及び $R_6 \sim R_{12}$ は、各々独立に水素又は下記の構造式(12-15)～(12-19)の中のいずれか1つで示されてもよい。

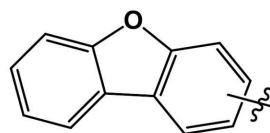
【化 3 6】



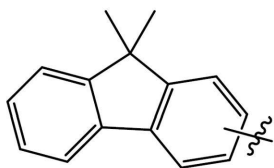
(12-15)



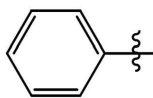
(12-16)



(12-17)



(12-18)



(12-19)

10

【 0 1 1 3 】

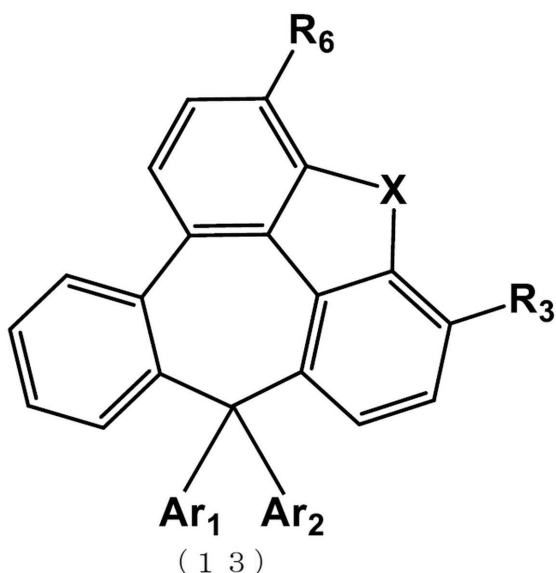
化学式 (12) において、 $R_1 \sim R_3$ 及び $R_6 \sim R_{12}$ の中の少なくとも 2 つは、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 以上 30 以下のヘテロアリール基であるか、或いは隣接する基と互いに結合して環を形成する。

【 0 1 1 4 】

$R_1 \sim R_3$ 及び $R_6 \sim R_{12}$ の中の 2 つは、置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 以上 30 以下のヘテロアリール基であるか、或いは隣接する基と互いに結合して環を形成し、 $R_1 \sim R_3$ 及び $R_6 \sim R_{12}$ の中の残りは、水素である。例えば、化学式 (12) は、下記の化学式 (13) で示すことができる。

20

【化 3 7】



30

40

【 0 1 1 5 】

化学式 (13) において、 R_3 及び R_6 は、各々独立に置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 以上 30 以下のヘテロアリール基であり、 X 、 Ar_1 及び Ar_2 は、化学式 (12) における定義と同一である。

【 0 1 1 6 】

但し、これに限定されるものではなく、例えば、 $R_1 \sim R_3$ 及び $R_6 \sim R_{12}$ の中の 3 つが置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数 6 以上 30 以

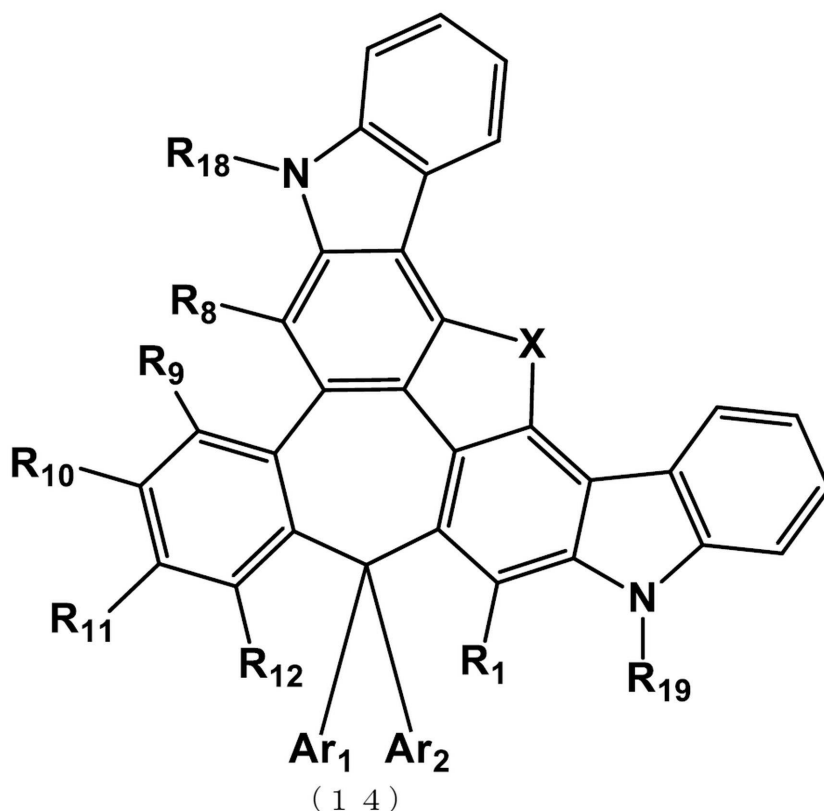
50

下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であるか、或いは隣接する基と互いに結合して環を形成し、 $R_1 \sim R_3$ 及び $R_6 \sim R_{12}$ の中の残りは、水素であってもよい。

【0117】

$R_1 \sim R_{12}$ の中の一部は、隣接する基と互いに結合して置換又は無置換のカルバゾールを形成してもよい。 $R_1 \sim R_{12}$ の中の一部は、隣接する基と互いに結合してN-アリールカルバゾールを形成してもよい。 $R_1 \sim R_{12}$ の中の一部は、隣接する基と互いに結合してN-フェニルカルバゾールを形成してもよい。例えば、化学式(12)は、下記の化学式(14)で示すことができる。

【化38】



【0118】

化学式(14)において、 R_{18} 及び R_{19} は、各々独立に水素、重水素、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であり、 X 、 Ar_1 、 Ar_2 、 R_1 及び $R_8 \sim R_{12}$ は、化学式(8)における定義と同一である。

【0119】

化学式(14)において、 R_{18} 及び R_{19} は、各々独立に置換又は無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基であってもよい。化学式(10)において、 R_{18} 及び R_{19} は、各々独立にN-アリールカルバゾリル基であってもよい。 R_{16} 及び R_{17} は、各々独立にN-フェニルカルバゾリル基であってもよい。

【0120】

化学式(14)において、 R_1 及び $R_8 \sim R_{12}$ は、水素である。

【0121】

化学式(12)は、下記の化学式(15)で示すことができる。

10

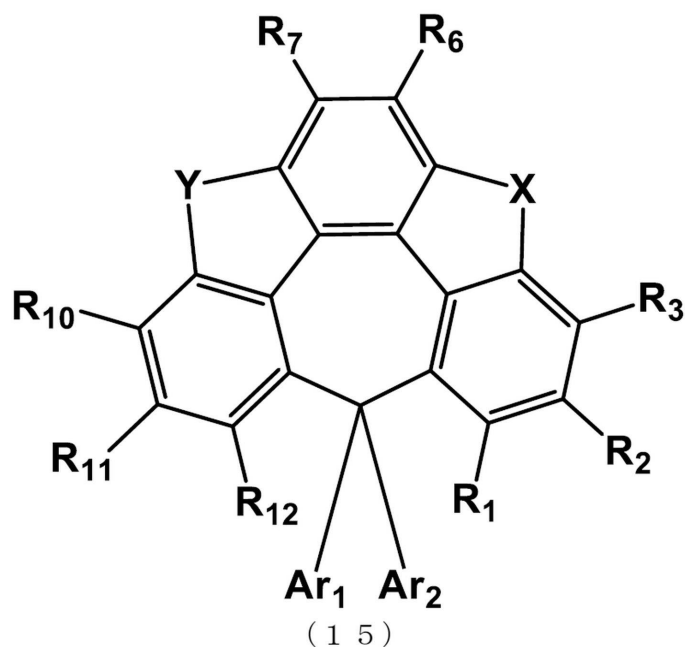
20

30

40

50

【化 3 9】



【 0 1 2 2 】

化学式 (1 5) において、Y は、O、S、NR₂₀、又は置換若しくは無置換のホスフィンオキシド基であり、R₂₀ は、水素、重水素、置換又は無置換の環形成炭素数 6 以上 3 0 以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数 2 以上 3 0 以下のヘテロアリール基であり、X、Ar₁、Ar₂、R₁～R₃、R₆、R₇ 及び R₁₀～R₁₂ は、化学式 (1 2) における定義と同一である。

【 0 1 2 3 】

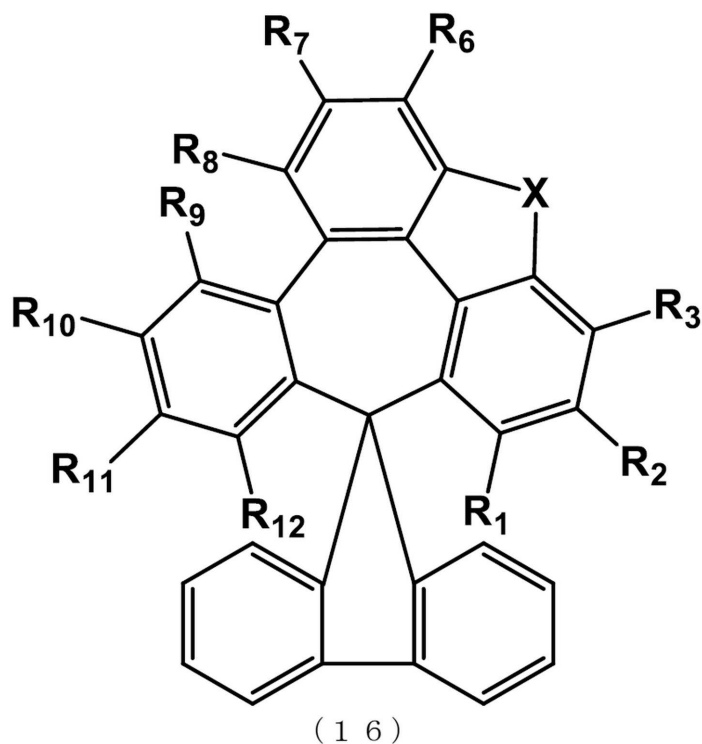
化学式 (1 5) において、Y は、フェニル基で置換されたホスフィンオキシド基である。

化学式 (1 5) において、Y は、NR₂₀ であり、R₂₀ は、フェニル基である。

【 0 1 2 4 】

化学式 (1 2) は、下記の化学式 (1 6) で示すことができる。

【化 4 0】



【0125】

化学式(16)において、X、R₁～R₃及びR₆～R₁₂は、化学式(12)における定義と同一である。

【0126】

化学式(16)において、R₃及びR₆は、各々独立に置換若しくは無置換のアリールアミノ基、置換若しくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、又は置換若しくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基である。

【0127】

化学式(16)において、R₃及びR₆は、各々独立に置換又は無置換のアリールアミノ基である。

【0128】

化学式(16)において、R₆及びR₇が互いに結合して置換又は無置換のカルバゾールを形成してもよい。化学式(16)において、R₆及びR₇が互いに結合してN-アリールカルバゾールを形成してもよい。化学式(16)において、R₆及びR₇が互いに結合してN-フェニルカルバゾールを形成してもよい。

【0129】

化学式(16)において、R₂及びR₃が互いに結合して置換又は無置換のカルバゾールを形成してもよい。化学式(16)において、R₂及びR₃が互いに結合してN-アリールカルバゾールを形成してもよい。化学式(16)において、R₂及びR₃が互いに結合してN-フェニルカルバゾールを形成してもよい。

【0130】

化学式(1)で示される多環化合物は、下記の化合物1～66で示された化合物の中から選択されるいずれか1つである。但し、これに限定されるものではない。

10

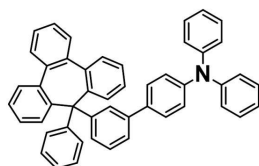
20

30

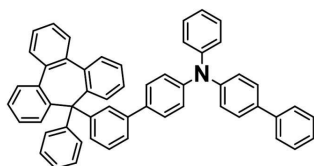
40

50

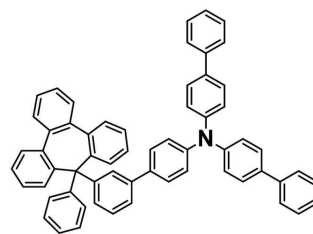
【化 4 1】



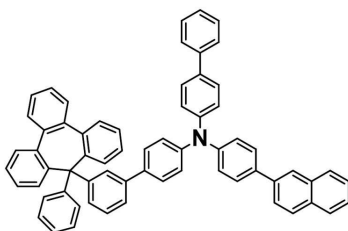
1



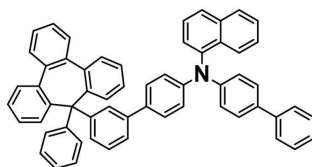
2



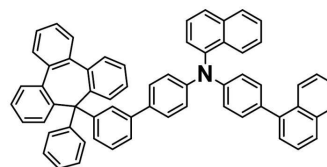
3



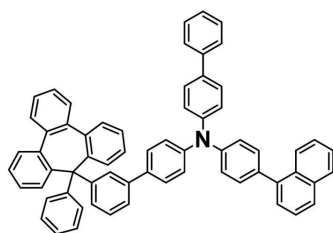
4



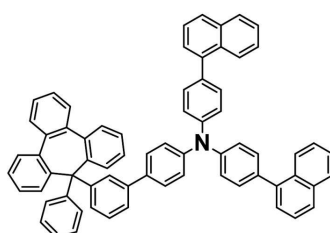
5



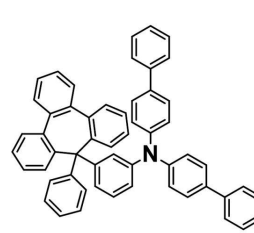
6



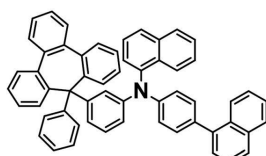
7



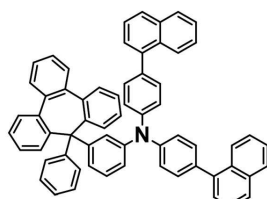
8



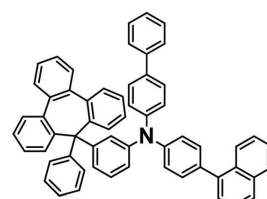
9



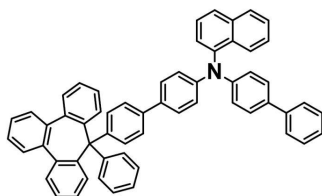
10



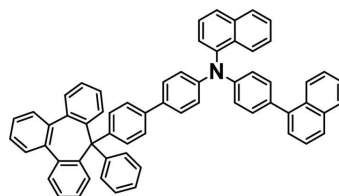
11



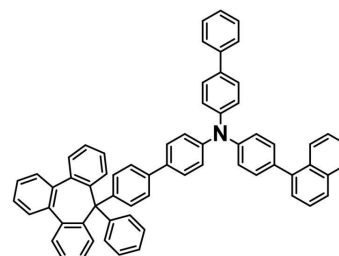
12



13



14



15

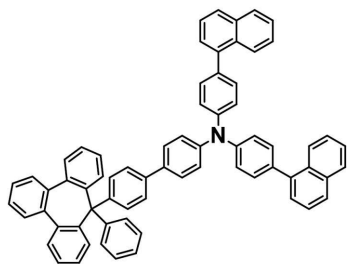
10

20

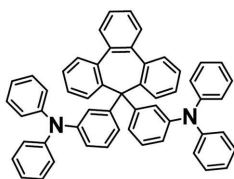
30

40

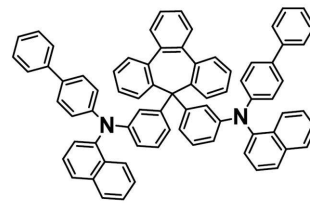
50



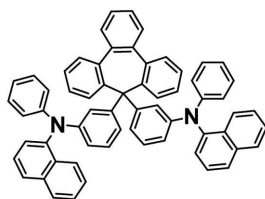
16



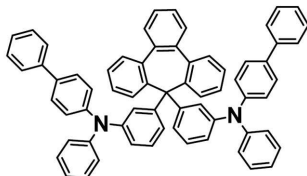
17



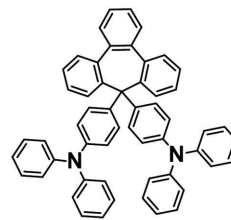
18



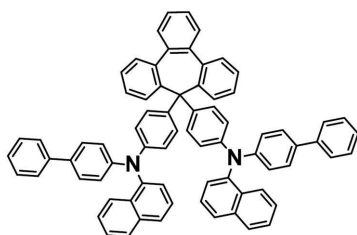
19



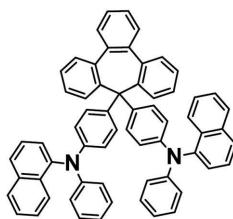
20



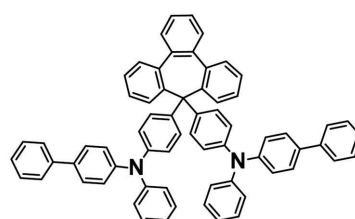
21



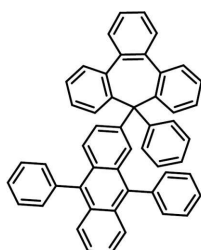
22



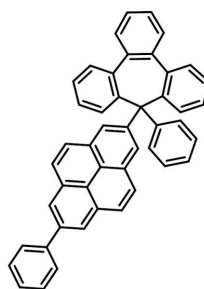
23



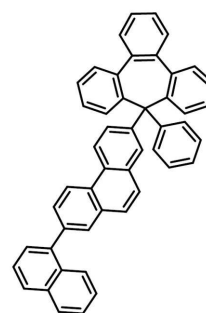
24



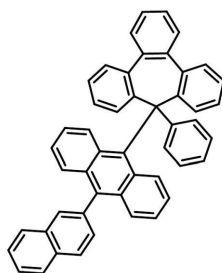
25



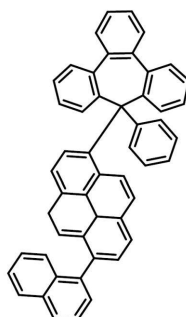
26



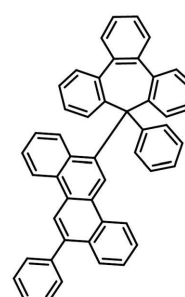
27



28



29



30

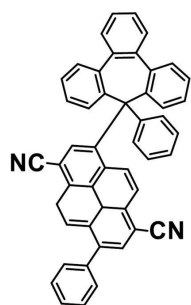
10

20

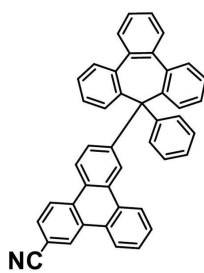
30

40

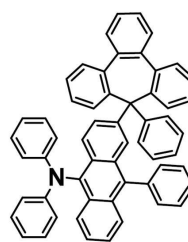
50



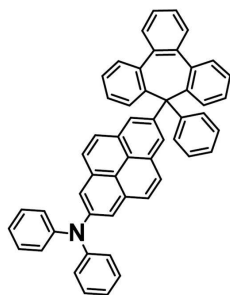
31



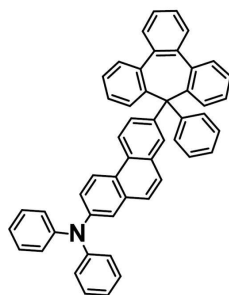
32



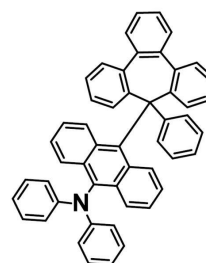
33



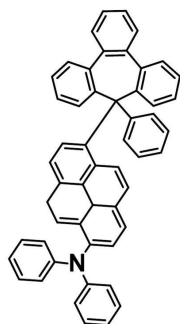
34



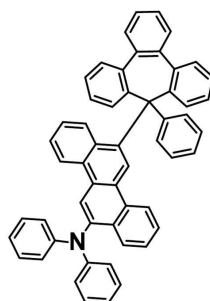
35



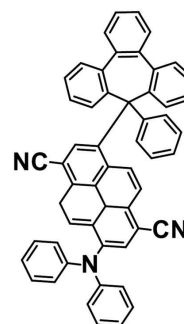
36



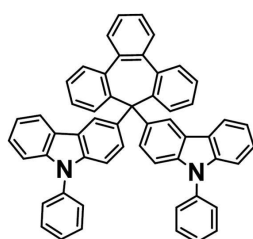
37



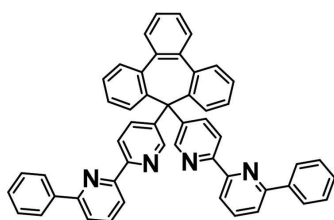
38



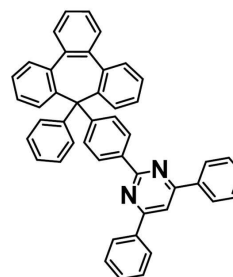
39



40



41



42

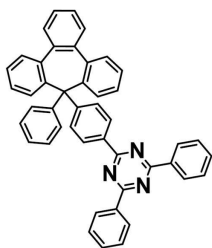
10

20

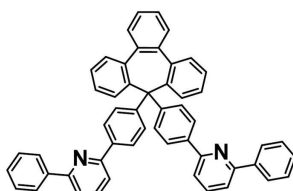
30

40

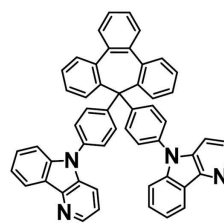
50



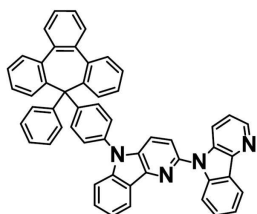
43



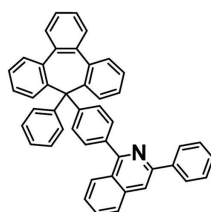
44



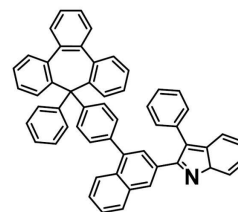
45



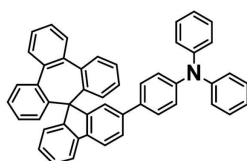
46



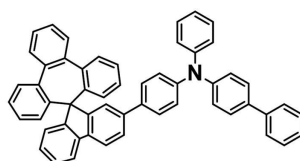
47



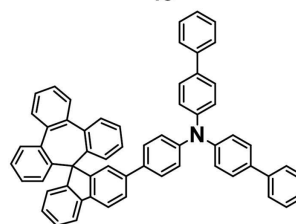
48



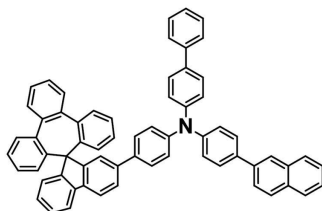
49



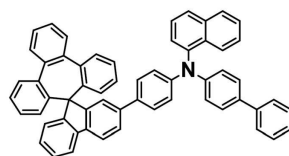
50



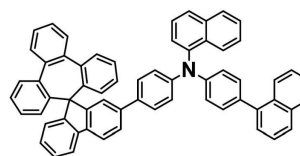
51



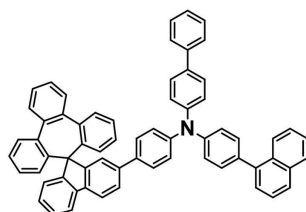
52



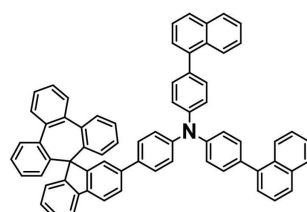
53



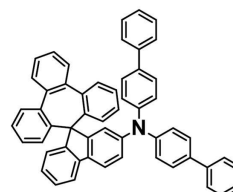
54



55



56



57

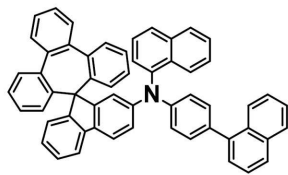
10

20

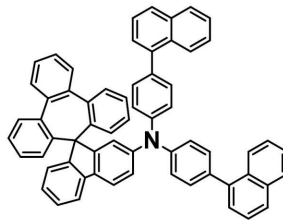
30

40

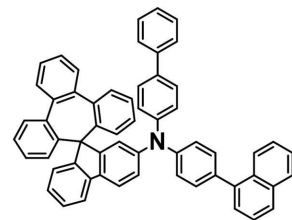
50



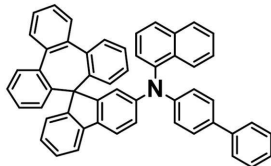
58



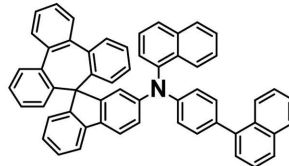
59



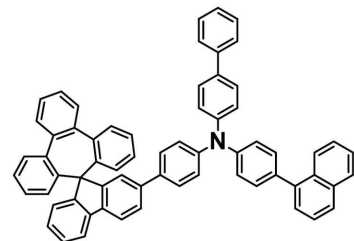
60



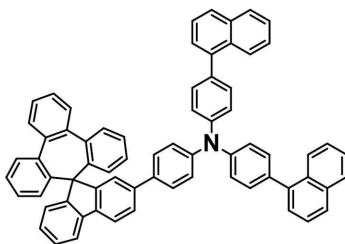
61



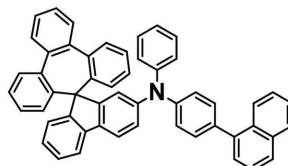
62



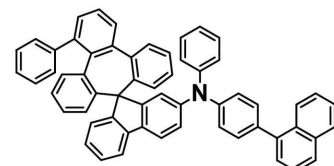
63



64



65



66

【 0 1 3 1 】

化学式（１）で示される多環化合物は、下記の化合物 6 7 ～ 1 2 2 で示された化合物の中から選択されるいずれか 1 つである。但し、これに限定されるものではない。

10

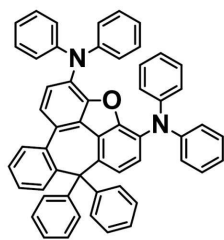
20

30

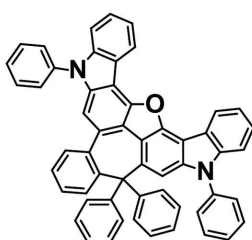
40

50

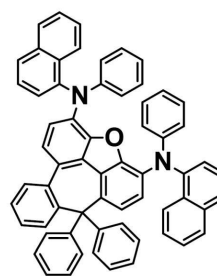
【化 4 2】



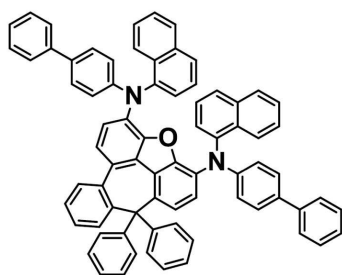
67



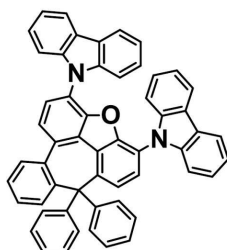
68



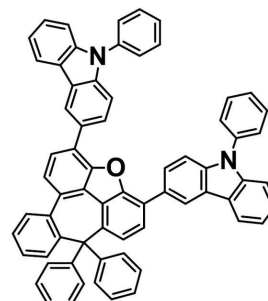
69



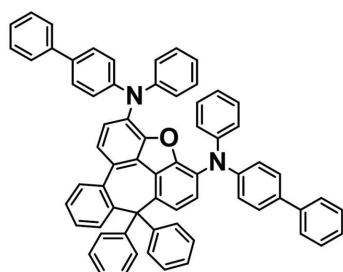
70



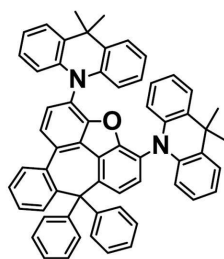
71



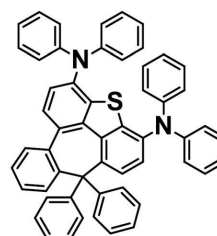
72



73



74



75

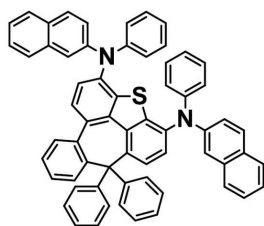
10

20

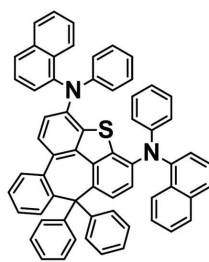
30

40

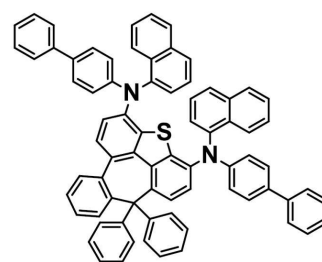
50



76

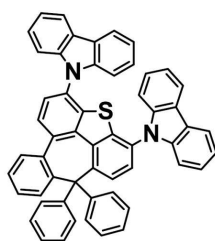


77

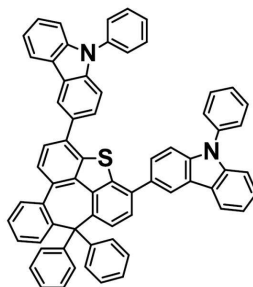


78

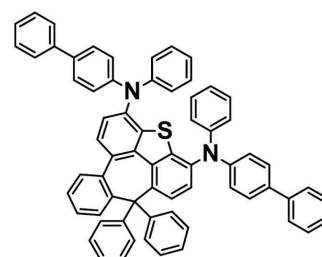
10



79



80



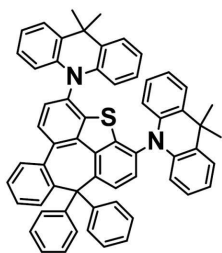
81

20

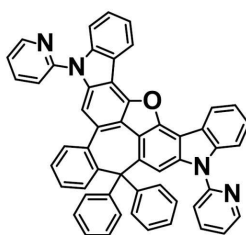
30

40

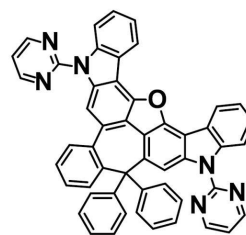
50



82

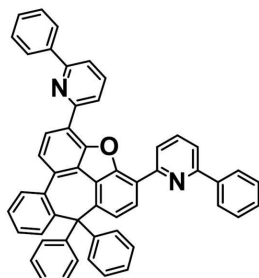


83

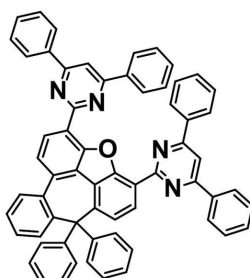


84

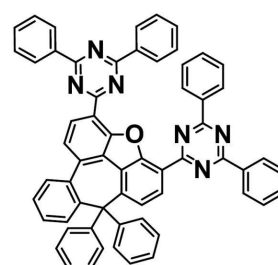
10



85

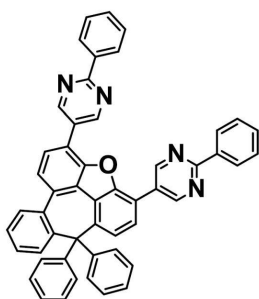


86

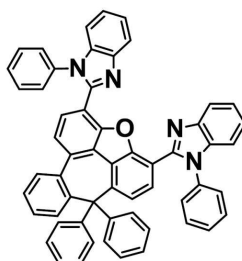


87

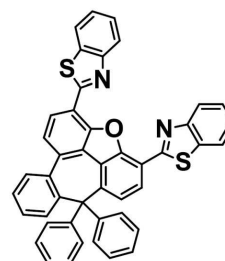
20



88



89

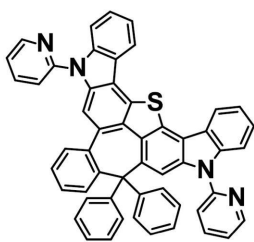


90

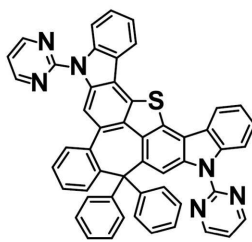
30

40

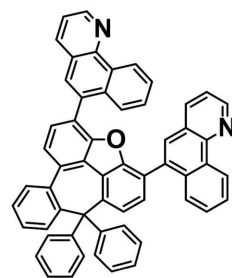
50



91

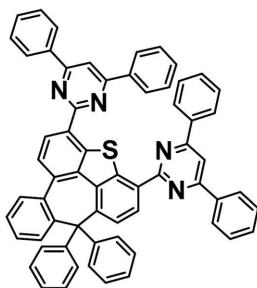


92

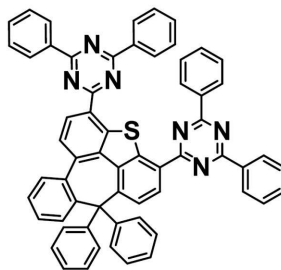


93

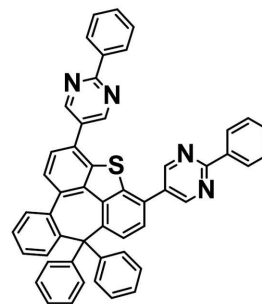
10



94

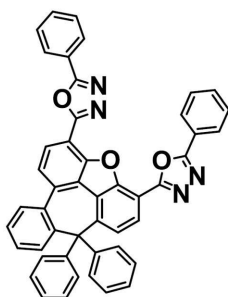


95

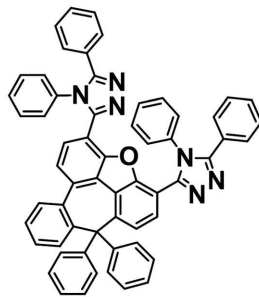


96

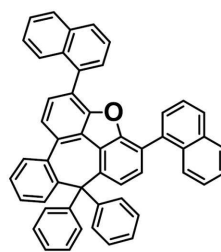
20



97



98

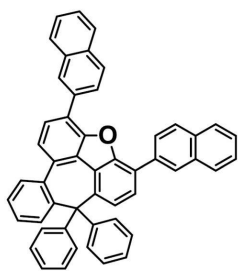


99

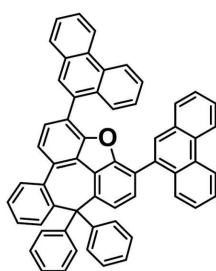
30

40

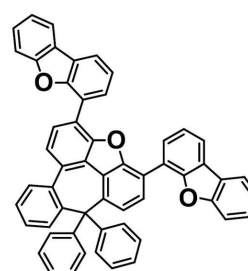
50



100

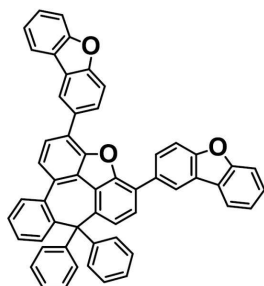


101

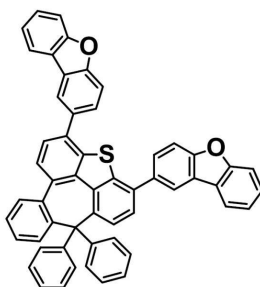


102

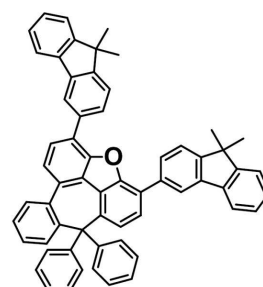
10



103

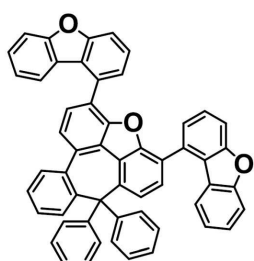


104

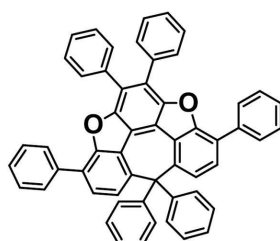


105

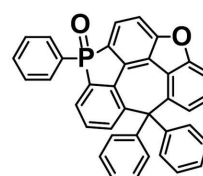
20



106

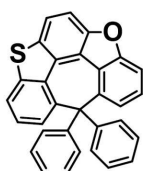


107

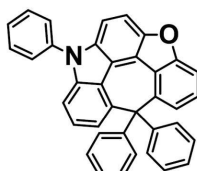


108

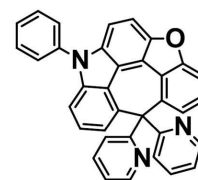
30



109

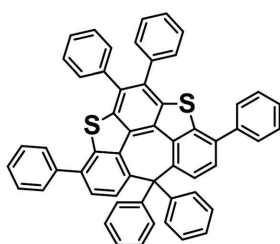


110

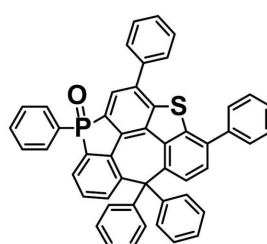


111

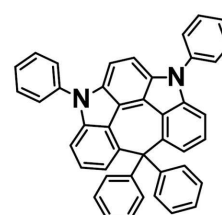
40



112

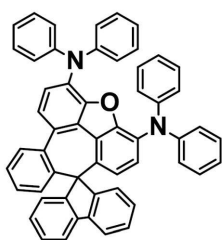


113

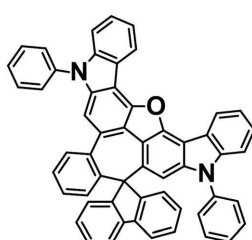


114

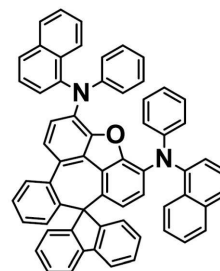
50



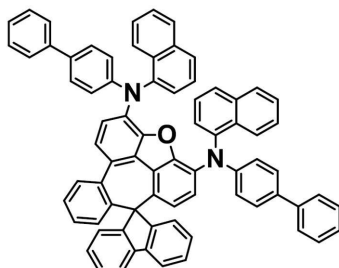
115



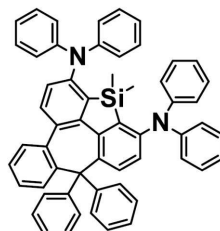
116



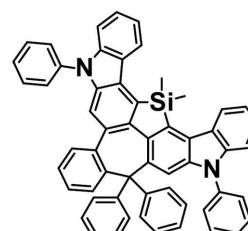
117



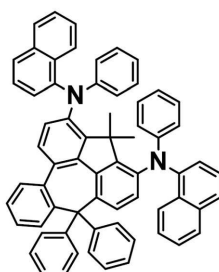
118



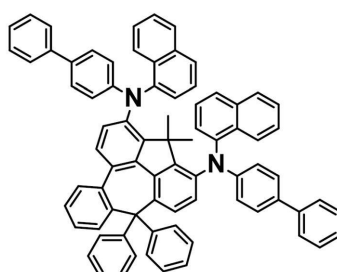
119



120



121



122

【0132】

本発明の一実施形態に係る多環化合物は、有機電界発光素子用材料として使用することができる。本発明の一実施形態に係る多環化合物は、有機電界発光素子の効率を向上させることができる。本発明の一実施形態に係る多環化合物は、有機電界発光素子の寿命を向上させることができる。

【0133】

化学式(1)のAが化学式(2-2)で示される場合、本発明の一実施形態に係る多環化合物は、アミノ基を含み、強い電子耐性を有する。アミノ基とスピロフェナントレン系化合物が互いに結合して、アミノ基のHOMO (highest occupied molecular orbital) 軌道拡散を制御し、分子対称性を崩してアモルファス性を向上させることができる。したがって、本発明の一実施形態に係る多環化合物を含む有機電界発光素子は、長寿命及び高い発光効率を得ることができる。

【0134】

化学式(1)のAが化学式(2-1)で示される場合、本発明の一実施形態に係る多環化合物は、電荷耐性が高いトリベンゾシクロヘプテンを含むことによって、有機電界発光素子の寿命向上を実現する。また、トリベンゾシクロヘプテンの大きい体積によって分子対称性が崩れ、アモルファス性が向上して有機電界発光素子の効率向上も実現する。また、化学式(12)～(16)のように、トリベンゾシクロヘプテンの中の2つのベンゼン環がXを通じて結合する場合、分子が固定化されて、電荷耐性が向上する効果がある。

【0135】

以下では、本発明の一実施形態に係る有機電界発光素子について説明する。先に説明した本発明の一実施形態に係る多環化合物との差異点を主として具体的に説明し、説明されなかった部分は、先に説明した本発明の一実施形態に係る多環化合物にしたがう。

【0136】

図1は、本発明の一実施形態に係る有機電界発光素子を概略的に示した断面図である。図2は、本発明の一実施形態に係る有機電界発光素子を概略的に示した断面図である。

【0137】

図1及び図2を参照すると、本発明の一実施形態に係る有機電界発光素子10は、第1電極EL1、正孔輸送領域HTR、発光層EML、電子輸送領域ETR、及び第2電極EL2を含む。

10

【0138】

第1電極EL1は、導電性を有する。第1電極EL1は、画素電極又は陽極である。第1電極EL1は、透過型電極、半透過型電極、又は反射型電極である。第1電極EL1が透過型電極である場合、第1電極EL1は、透明金属酸化物、例えば、ITO(indium tin oxide)、IZO(indium zinc oxide)、ZnO(zinc oxide)、ITZO(indium tin zinc oxide)等からなる。第1電極EL1が半透過型電極又は反射型電極である場合、第1電極EL1は、Ag、Mg、Cu、Al、Pt、Pd、Au、Ni、Nd、Ir、Cr、Li、Ca、LiF/Ca、LiF/Al、Mo、Ti又はこれらの化合物や混合物(例えば、AgとMgの混合物)を含むことができる。又は前記物質で形成された反射膜や半透過膜及びITO、IZO、ZnO、ITZO等で形成された透明導電膜を含む複数の層構造であってもよい。

20

【0139】

以下では、前述した本発明の一実施形態に係る化学式(1)で示される多環化合物が正孔輸送領域HTR及び発光層EMLの中の少なくとも1つに含まれることを例として説明する。但し、これに限定されるものではなく、本発明の一実施形態に係る多環化合物は、第1電極EL1及び第2電極EL2の間に配置された1層以上の有機層の中の少なくとも1つの層に含まれることができる。

【0140】

正孔輸送領域HTRは、第1電極EL1上に配置される。正孔輸送領域HTRは、正孔注入層HIL、正孔輸送層HTL、正孔バッファ層、及び電子阻止層の中の少なくとも1つを含む。正孔輸送領域HTRの厚さは、例えば約1000Å～約1500Åである。

30

【0141】

正孔輸送領域HTRは、単一物質からなる単一層、複数の互に異なる物質からなる単一層、又は複数の互に異なる物質からなる複数の層を有する多層構造を有することができる。

【0142】

例えば、正孔輸送領域HTRは、正孔注入層HIL、又は正孔輸送層HTLの単一層の構造を有してもよく、正孔注入物質と正孔輸送物質からなる単一層の構造を有してもよい。また、正孔輸送領域は、複数の互いに異なる物質からなる単一層の構造を有するか、或いは第1電極ANから順に積層された正孔注入層HIL/正孔輸送層HTL、正孔注入層HIL/正孔輸送層HTL/正孔バッファ層、正孔注入層HIL/正孔バッファ層、正孔輸送層HTL/正孔バッファ層又は正孔注入層HIL/正孔輸送層HTL/電子阻止層の構造を有するが、これらに限定されるものではない。

40

【0143】

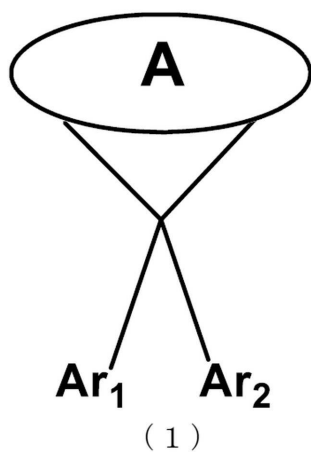
正孔輸送領域HTRは、真空蒸着法、スピンコーティング法、キャスト法、LB法(Langmuir-Blodgett)、インクジェットプリンティング法、レーザープリンティング法、レーザー熱転写法(Laser Induced Thermal Imaging、LITI)等のような多様な方法を利用して形成することができる。

【0144】

50

正孔輸送領域 H T R は、前述した本発明の一実施形態に係る多環化合物を含む。具体的には、正孔輸送領域 H T R は、前述した化学式（１）で示される多環化合物を含む。

【化４３】



10

【 0 1 4 5 】

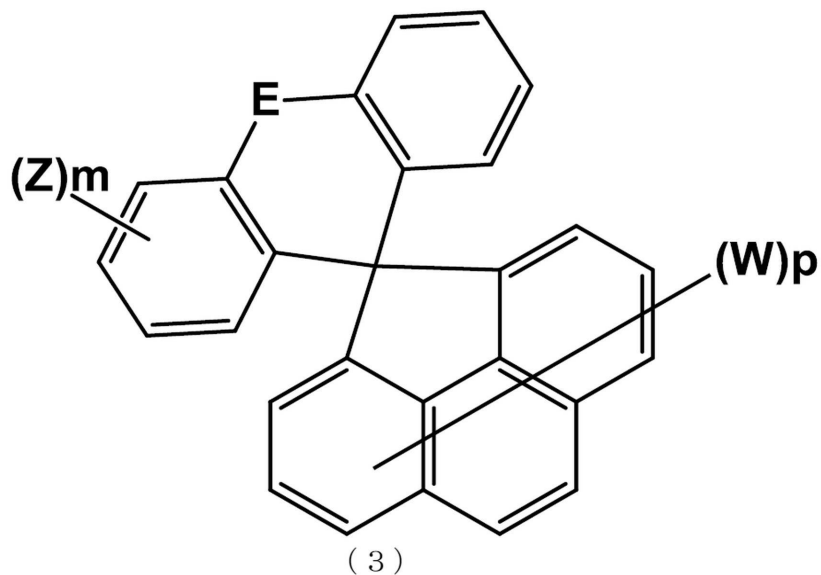
A、Ar₁及びAr₂に関する具体的な説明は、前述と同様であるため、省略する。

【 0 1 4 6 】

正孔輸送領域 H T R は、前述した化学式（３）で示される多環化合物を含む。

20

【化４４】



30

【 0 1 4 7 】

化学式（３）に関する具体的な説明は、前述と同様であるため、省略する。

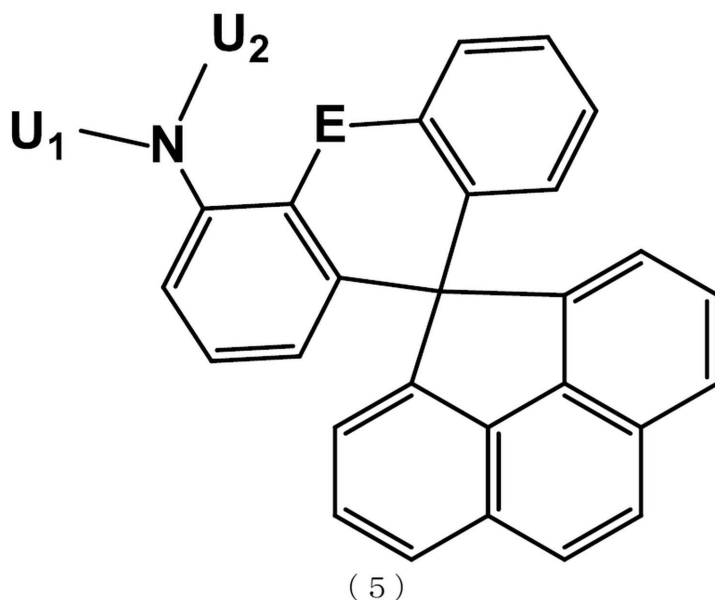
【 0 1 4 8 】

正孔輸送領域 H T R は、前述した化学式（５）で示される多環化合物を含む。

40

50

【化 4 5】



【 0 1 4 9 】

化学式 (5) に関する具体的な説明は、前述と同様であるため、省略する。

【 0 1 5 0 】

正孔輸送領域 H T R が化学式 (3) 又は (5) で示される多環化合物を含む場合、多環化合物がアミノ基を含んで、強い電子耐性を有する。また、アミノ基とスピロフェナントレン系化合物とが互いに結合して、アミノ基の H O M O 軌道拡散を制御し、分子対称性を崩してアモルファス性を向上させることができる。したがって、本発明の一実施形態に係る有機電界発光素子は、長寿命及び高い発光効率を得ることができる。

【 0 1 5 1 】

正孔輸送領域 H T R は、前述した化学式 (6) 、化学式 (6 - 1) 、化学式 (7) 、及び化学式 (8) の中の 1 つで示される多環化合物を含む。この場合、アミンにトリベンゾシクロヘプテンを導入して、トリベンゾシクロヘプテンの高い電荷耐性によって寿命が向上され、トリベンゾシクロヘプテンの大きい体積によって分子対称性が崩れ、アモルファス性が向上して効率を向上させることができる。

10

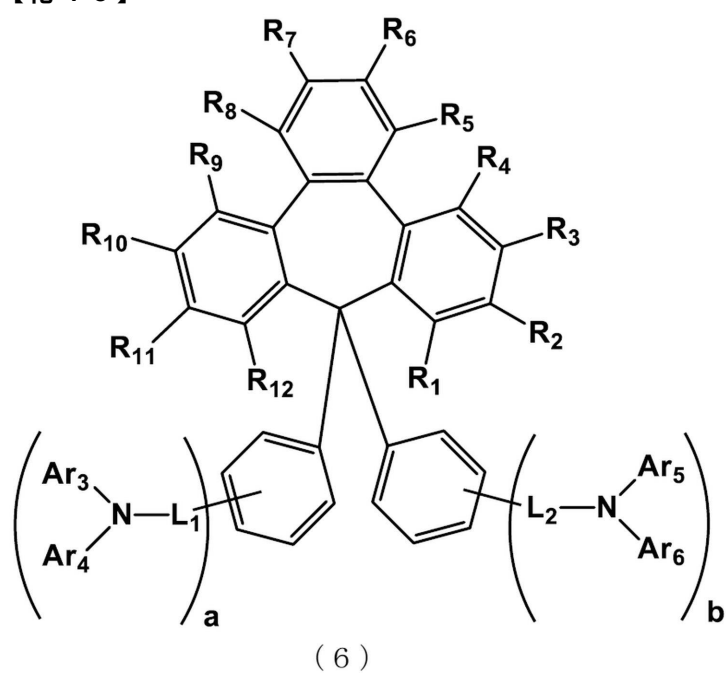
20

30

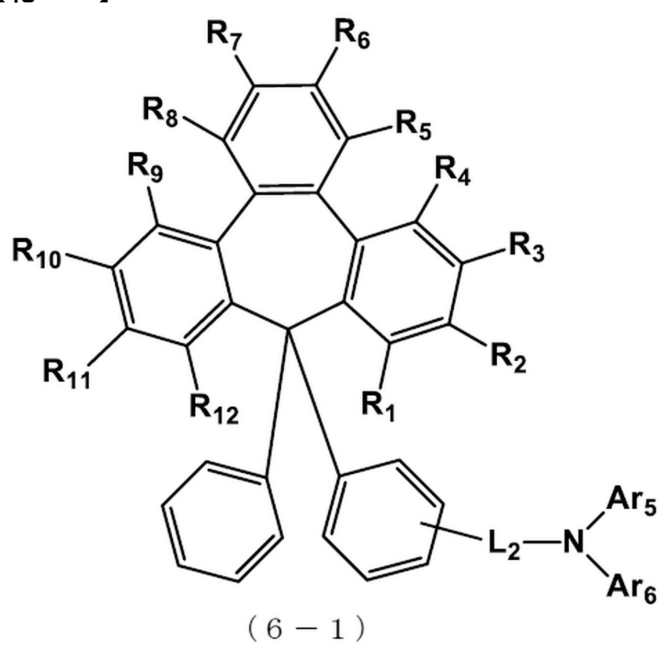
40

50

【化 4 6】



【化 4 7】



10

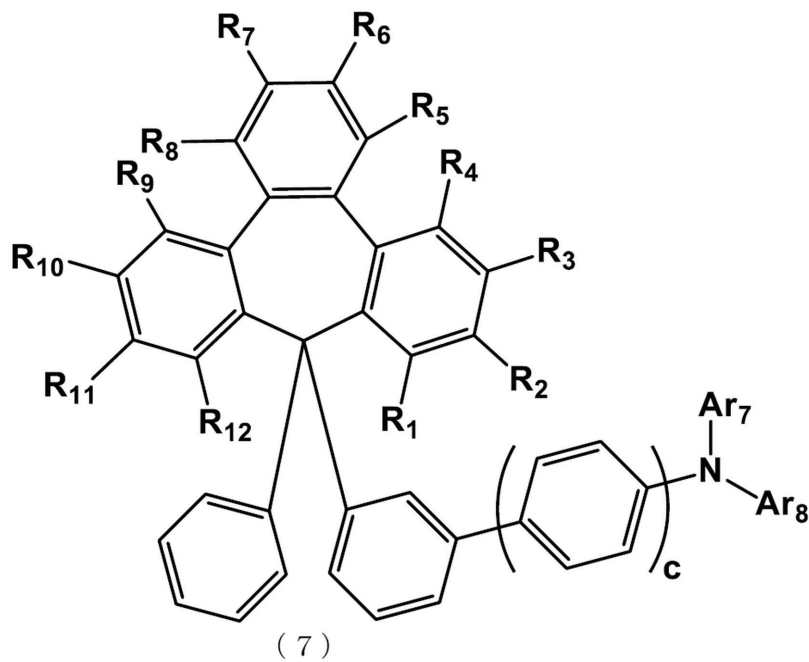
20

30

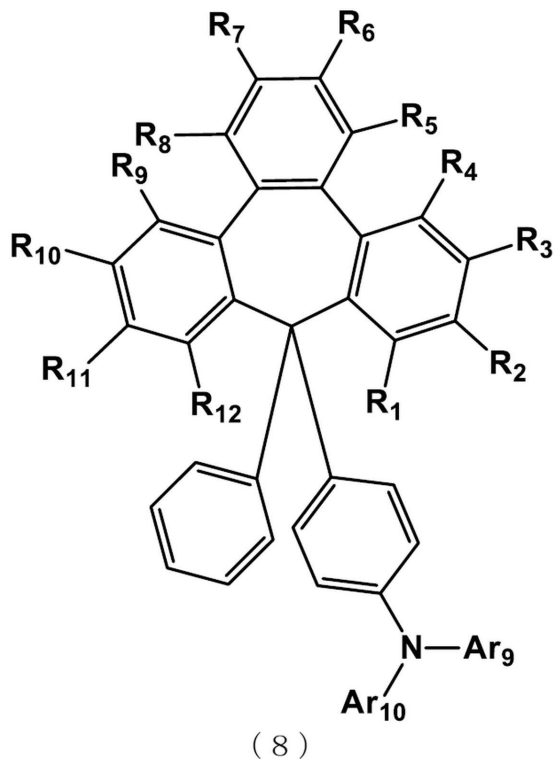
40

50

【化 4 8】



【化 4 9】



【 0 1 5 2】

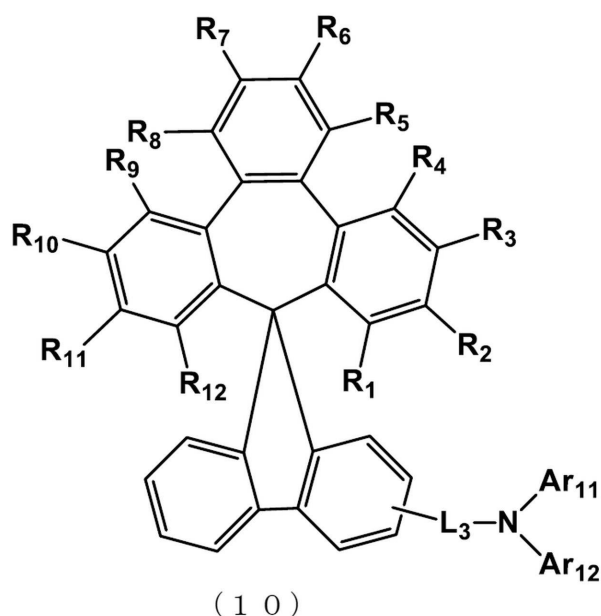
化学式 (6)、化学式 (6 - 1)、化学式 (7)、及び化学式 (8) に関する具体的な説明は、前述と同様であるため、省略する。

【 0 1 5 3】

正孔輸送領域 HTR は、前述した化学式 (1 0) で示される多環化合物を含む。この場合、アミンにトリベンゾシクロヘプテンを導入して、アミンの高い正孔輸送性を維持することと共にトリベンゾシクロヘプテンの高い電荷耐性によって寿命が向上し、トリベンゾシクロヘプテンの大きい体積によって分子対称性が崩れ、アモルファス性が向上して効率を

向上させることができる。

【化 5 0】



【 0 1 5 4 】

化学式 (1 0) に関する具体的な説明は、前述と同様であるため、省略する。

【 0 1 5 5 】

前述した本発明の一実施形態に係る化学式 (1) で示される多環化合物を含む層は、正孔輸送層 HTL である。正孔輸送層 HTL は、化学式 (1) で示される多環化合物を 1 種又は 2 種以上含むことができる。正孔輸送層 HTL は、化学式 (1) で示される多環化合物以外の公知の材料をさらに含むことができる。

【 0 1 5 6 】

正孔輸送層 HTL が本発明の一実施形態に係る多環化合物を含む場合、正孔注入層 HIL は、例えば銅フタロシアニン等のフタロシアニン化合物；DNTPD (N、N′-diphenyl-N、N′-bis-[4-(phenyl-m-tolyl-amino)-phenyl]-biphenyl-4、4′-diamine)、m-MTDATA (4、4′、4″-tris(3-methylphenylphenylamino) triphenylamine)、TDATA (4、4′、4″-Tris(N、N-diphenylamino) triphenylamine)、2-TNATA (4、4′、4″-tris{N、-(2-naphthyl)-N-phenylamino}-triphenylamine)、PEDOT/PSS (Poly(3、4-ethylenedioxythiophene)/Poly(4-styrenesulfonate))、PANI/DBSA (Polyaniline/Dodecylbenzenesulfonic acid)、PANI/CSA (Polyaniline/Camphor sulfonic acid)、PANI/PSS ((Polyaniline)/Poly(4-styrenesulfonate))、NPB (N、N′-di(naphthalene-1-yl)-N、N′-di(phenyl)-benzidine)、トリフェニルアミンを含むポリエーテルケトン (TPAPEK)、4-Isopropyl-4′-methyldiphenyliodonium Tetrakis(pentafluorophenyl) borate] 等を含むこともできる。

【 0 1 5 7 】

正孔輸送層 HTL が本発明の一実施形態に係る化学式 (1) で示される多環化合物を含まない場合、正孔輸送層 HTL は、公知の材料を含むことができる。例えば、正孔輸送層 HTL は、N-フェニルカルバゾール、ポリビニルカルバゾール等のカルバゾール系誘導体、フルオレン系誘導体、TPD (N、N′-bis(3-methylphenyl)-

N、N'-diphenyl-[1,1-biphenyl]-4,4'-diamine)、TCTA(4,4',4''-tris(N-carbazolyl)triphenylamine)等のようなトリフェニルアミン系誘導体、NPB(N、N'-di(1-naphthyl)-N、N'-diphenylbenzidine)、TAPC(4,4'-Cyclohexylidene bis[N、N-bis(4-methylphenyl)benzenamine])、HMTPD(4,4'-Bis[N、N'-(3-tolyl)amino]-3,3'-dimethylbiphenyl)等を含んでもよい。

【0158】

正孔輸送領域HTRの厚さは、約100Å～約10000Å、例えば約100Å～約1000Åである。正孔輸送領域HTRが正孔注入層HIL及び正孔輸送層HTLを全て含めば、正孔注入層HILの厚さは、約100Å～約10000Å、例えば約100Å～約1000Åであり、正孔輸送層HTLの厚さは、約30Å～約1000Åである。正孔輸送領域HTR、正孔注入層HIL、及び正孔輸送層HTLの厚さが前述したような範囲を満たす場合、実質的な駆動電圧上昇なく十分な正孔輸送特性が得られる。

【0159】

正孔輸送領域HTRは、先に言及した物質以外に、導電性向上のための電荷生成物質をさらに含むことができる。電荷生成物質は、正孔輸送領域HTR内に均一に又は不均一に分散され得る。電荷生成物質は、例えば、p-ドーパントである。p-ドーパントは、キノン誘導体、金属酸化物及びシアノ基含有化合物の中のいずれか1つであるが、これらに限定されるものではない。例えば、p-ドーパントの非制限的な例としては、TCNQ(Tetracyanoquinodimethane)及びF4-TCNQ(2,3,5,6-tetrafluoro-tetracyanoquinodimethane)等のようなキノン誘導体、タングステン酸化物及びモリブデン酸化物等のような金属酸化物等を挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0160】

先に言及したように、正孔輸送領域HTRは、正孔注入層HIL、正孔輸送層HTL以外に、正孔バッファ層及び電子阻止層の中の少なくとも1つを含む。正孔バッファ層は、発光層EMLから放出される光の波長による共振距離を補償して光の放出効率を増加させることができる。正孔バッファ層に含まれる物質としては、正孔輸送領域HTRに含まれることができる物質を使用することができる。電子阻止層は、電子輸送領域ETRから正孔輸送領域HTRへの電子注入を防止する役割をする層である。

【0161】

発光層EMLは、正孔輸送領域HTR上に配置される。発光層EMLの厚さは、例えば約100Å～約300Åである。発光層EMLは、単一物質でなる単一層、複数の互に異なる物質でなる単一層又は複数の互に異なる物質からなる複数の層を有する多層構造を有することができる。

【0162】

発光層EMLが本発明の一実施形態に係る化学式(1)で示される多環化合物を含むことができる。この場合、正孔輸送領域HTRは、本発明の一実施形態に係る化学式(1)で示される多環化合物を含まなくともよく、含んでもよい。発光層EMLは、本発明の一実施形態に係る化学式(1)で示される化合物をホストとして含むことができる。

【0163】

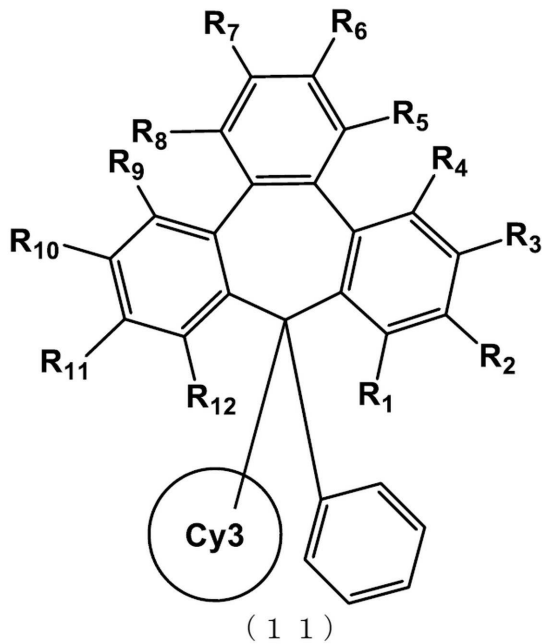
発光層EMLは、化学式(1)で示される多環化合物を1種又は2種以上含むことができる。発光層EMLは、化学式(1)で示される多環化合物以外の公知の材料をさらに含むことができる。例えば、スピロ-DPVB(i) (spiro-DPVB(i))、スピロ-6P (spiro-6P)、DSB(distyryl-benzene)、DSA(distyryl-arylene)、PFO(Polyfluorene)系高分子及びPPV(poly(p-phenylenevinylene)系高分子からなる群から選択されたいずれか1つを含む蛍光物質をさらに含むことができる。但し、これに限定される

ものではなく、発光層 EML は、燐光物質を含むことがあってもよい。

【0164】

発光層 EML は、前述した化学式 (11) で示される多環化合物を含むことができる。

【化51】



【0165】

化学式 (11) に関する具体的な説明は、前述と同様であるため、省略する。

【0166】

アントラセニル基等 3 環又は 4 環のアリール基にトリベンゾシクロヘプテンを導入して、アントラセニル基等の優れた発光特性を維持すると同時にトリベンゾシクロヘプテンの高い電荷耐性によって寿命をさらに向上することができ、トリベンゾシクロヘプテンの大きい体積によって分子対称性が崩れ、アモルファス性が向上して効率を向上させることができる。

【0167】

本発明の一実施形態に係る化学式 (1) で示される多環化合物が発光層 EML に含まれる場合、発光層 EML は、公知の材料を含むことができる。例えば、発光層 EML は、カルバゾール誘導体、トリアリールアミン誘導体、含窒素多環誘導体、チオフェン誘導体、フラン誘導体、アザカルバゾール誘導体、ジアザカルバゾール誘導体等を含むことができ、ドーパントに縮合多環芳香族化合物を含むことができる。例えば、ドーパントとしてアントラセン誘導体、ナフタレン誘導体、フェナントレン誘導体、ピレン誘導体、テトラセン誘導体、ペンタセン誘導体、クリセン誘導体、ペリレン誘導体、ルブレン誘導体、ビニルアントラセン誘導体、又はジアミノカルバゾール誘導体等を含むことができる。ドーパント材料がこれらに限定されるものではない。例えば、ドーパント材料として銅錯体、白金錯体、又はイリジウム錯体等を含む。

【0168】

発光層 EML は、例えば 10 nm 以上 60 nm 以下の厚さを有する。電子輸送領域 ETR は、発光層 EML 上に配置される。電子輸送領域 ETR は、電子阻止層、電子輸送層 ETL、及び電子注入層 EIL の中の少なくとも 1 つを含むが、これらに限定されるものではない。

【0169】

電子輸送領域 ETR は、単一物質からなる単一層、複数の互に異なる物質からなる単一層、又は複数の互に異なる物質からなる複数の層を有する多層構造を有することができる。

【0170】

例えば、電子輸送領域 ETR は、電子注入層 EIL 又は電子輸送層 ETL の単一層の構造を有してもよく、電子注入物質と電子輸送物質からなる単一層の構造を有してもよい。また、電子輸送領域 ETR は、複数の互に異なる物質からなる単一層の構造を有するか、或いは第 1 電極 AN から順に積層された電子輸送層 ETL / 電子注入層 EIL、正孔阻止層 / 電子輸送層 ETL / 電子注入層 EIL 構造を有することができるが、これらに限定されるものではない。電子輸送領域 ETR の厚さは、例えば約 1000 Å ~ 約 1500 Å である。

【0171】

電子輸送領域 ETR は、真空蒸着法、スピンコーティング法、キャスト法、LB 法 (Langmuir-Blodgett)、インクジェットプリンティング法、レーザープリンティング法、レーザー熱転写法 (Laser Induced Thermal Imaging、LITI) 等のような多様な方法を利用して形成することができる。

【0172】

電子輸送領域 ETR が電子輸送層 ETL を含む場合、電子輸送領域 ETR は、Alq3 (Tris (8-hydroxyquinolinato) aluminum)、1, 3, 5-tri [(3-pyridyl) -phen-3-yl] benzene、2, 4, 6-tris (3' - (pyridin-3-yl) biphenyl-3-yl) -1, 3, 5-triazine、2 - (4 - (N-phenylbenzimidazolyl-1-ylphenyl) -9, 10-dinaphthylanthracene、TPBi (1, 3, 5-Tri (1-phenyl-1H-benzo [d] imidazol-2-yl) phenyl)、BCP (2, 9-Dimethyl-4, 7-diphenyl-1, 10-phenanthroline)、Bphen (4, 7-Diphenyl-1, 10-phenanthroline)、TAZ (3 - (4-Biphenyllyl) -4-phenyl-5-tert-butylphenyl-1, 2, 4-triazole)、NTAZ (4 - (Naphthalen-1-yl) -3, 5-diphenyl-4H-1, 2, 4-triazole)、tBu-PBD (2 - (4-Biphenyllyl) -5 - (4-tert-butylphenyl) -1, 3, 4-oxadiazole)、BALq (Bis (2-methyl-8-quinolinolato-N1, O8) - (1, 1' -Biphenyl-4-olato) aluminum)、Bebq2 (berylliumbis (benzoquinolin-10-olate)、ADN (9, 10-di (naphthalene-2-yl) anthracene) 及びこれらの混合物を含むことができるが、これらに限定されるものではない。電子輸送層 ETL の厚さは、約 100 Å ~ 約 1000 Å、例えば約 150 Å ~ 約 500 Å である。電子輸送層 ETL の厚さが前述したような範囲を満足する場合、実質的な駆動電圧の上昇なしでも満足できる程度の電子輸送特性を得ることができる。

【0173】

電子輸送領域 ETR が電子注入層 EIL を含む場合、Al、Ag、Li、Mg 及び Ca 等の金属及びこれらの混合物を含むことができる。但し、これらに限定されるものではない。例えば、電子注入層 EIL には、LiF、LiQ (Lithium quinolate)、Li₂O、BaO、NaCl、CsF、Yb のようなランタノイド族金属、又は RbCl、RbI のようなハロゲン化金属等を使用することができるが、これらに限定されるものではない。また、電子注入層 EIL は、電子輸送物質と絶縁性の有機金属塩とが混合された物質からなる。有機金属塩は、エネルギーバンドギャップが約 4 eV 以上の物質になる。具体的には、例えば、有機金属塩は、金属アセテート、金属ベンゾエート、金属アセトアセテート、金属アセチルアセトネート、又は金属ステアレートを含むことができる。電子注入層 EIL の厚さは、約 1 Å ~ 約 100 Å、約 3 Å ~ 約 90 Å である。電子注入層 EIL の厚さが前述したような範囲を満たす場合、実質的な駆動電圧の上昇なしでも十分な電子注入特性を得ることができる。

【0174】

電子輸送領域 ETR は、先に言及したように、正孔阻止層を含む。正孔阻止層は、例えば

10

20

30

40

50

B C P (2 , 9 - d i m e t h y l - 4 , 7 - d i p h e n y l - 1 , 1 0 - p h e n a n t h r o l i n e) 及び B p h e n (4 , 7 - d i p h e n y l - 1 , 1 0 - p h e n a n t h r o l i n e) の中の少なくとも1つを含むことができるが、これらに限定されるものではない。

【0175】

第2電極E L 2は、電子輸送領域E T R上に配置される。第2電極E L 2は、共通電極又は陰極である。第2電極E L 2は、透過型電極、半透過型電極、又は反射型電極である。第2電極E L 2が透過型電極である場合、第2電極E L 2は、透明金属酸化物、例えば、I T O、I Z O、Z n O、I T Z O等からなる。

【0176】

第2電極E L 2が半透過型の電極又は反射型電極である場合、第2電極E L 2は、A g、M g、C u、A l、P t、P d、A u、N i、N d、I r、C r、L i、C a、L i F / C a、L i F / A l、M o、T i又はこれらの化合物、或いは混合物（例えば、A gとM gとの混合物）を含むことができる。または、前記物質で形成された反射膜や半透過膜及びI T O、I Z O、Z n O、I T Z O等で形成された透明導電膜を含む複数の層構造であってもよい。

【0177】

図示していないが、第2電極E L 2は、補助電極と接続することができる。第2電極E L 2が補助電極と接続されれば、第2電極E L 2の抵抗を減少させることができる。

【0178】

有機電界発光素子10で、第1電極E L 1と第2電極E L 2とに各々電圧が印加されることによって、第1電極E L 1から注入された正孔は、正孔輸送領域H T Rを経て発光層E M Lに移動され、第2電極E L 2から注入された電子が電子輸送領域E T Rを経て発光層E M Lに移動される。電子と正孔は、発光層E M Lで再結合して励起子を生成し、励起子が励起状態から基底状態へと遷移することによって発光するようになる。

【0179】

有機電界発光素子O E L 10が前面発光型である場合、第1電極E L 1は、反射型電極であり、第2電極E L 2は、透過型電極又は半透過型電極である。有機電界発光素子O E L 10が背面発光型である場合、第1電極E L 1は、透過型電極又は半透過型電極であり、第2電極E L 2は、反射型電極である。

【0180】

本発明の一実施形態に係る有機電界発光素子は、化学式(1)で示される多環化合物を含み、発光効率及び寿命を向上させることができる。化学式(1)で示される多環化合物は、トリベンゾシクロヘプテンのコア構造を含み、トリベンゾシクロヘプテンの高い電荷耐性によって寿命を向上させることができ、トリベンゾシクロヘプテンの大きい体積によって分子構造のアモルファス性を向上させて高効率化を実現することができる。

【0181】

以下、具体的な製造方法、実施例及び比較例を通じて、本発明をより具体的に説明する。下記の実施例は、本発明の理解を助けるための例示に過ぎず、本発明の範囲がこれに限定されるものではない。

【0182】

本発明の一実施形態に係る化学式(1)で示される多環化合物は、例えば、下記のように合成することができる。但し、これによって限定されるものではない。

【0183】

(製造方法)

1. 化合物9の合成

(化合物Aの合成)

10

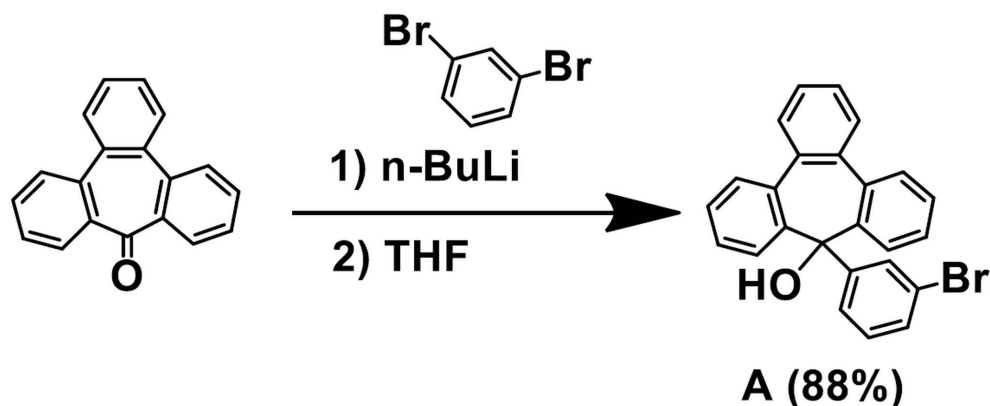
20

30

40

50

【化52】



10

【0184】

アルゴン (Ar) 雰囲気下で、200 mL の三口フラスコに 1,3-ジブロモベンゼンとトリベンゾシクロヘプテンを 5.00 g 入れ、40 mL の THF (Tetrahydrofuran) 溶媒の中で -78°C に設定した。その後、 $n\text{-BuLi}$ のヘキサン溶液 (1.60 M) 13.3 mL を徐々に加えながら、 -78°C で 1 時間攪拌した。その後、9H-トリベンゾ [a, c, e] [7] -アヌレン-9-オンと 1,3-ジブロモベンゼンと 4.3 g の 50 mL の THF 溶液を滴下し、室温に戻して 2 時間攪拌した。その後、有機層を分取し、溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエンとヘキサンの混合溶媒を使用) で精製した後、トルエン/ヘキサンの混合溶媒で再結晶を行い、白色固体の化合物 A を 7.70 g (収率 88%) 得た。

20

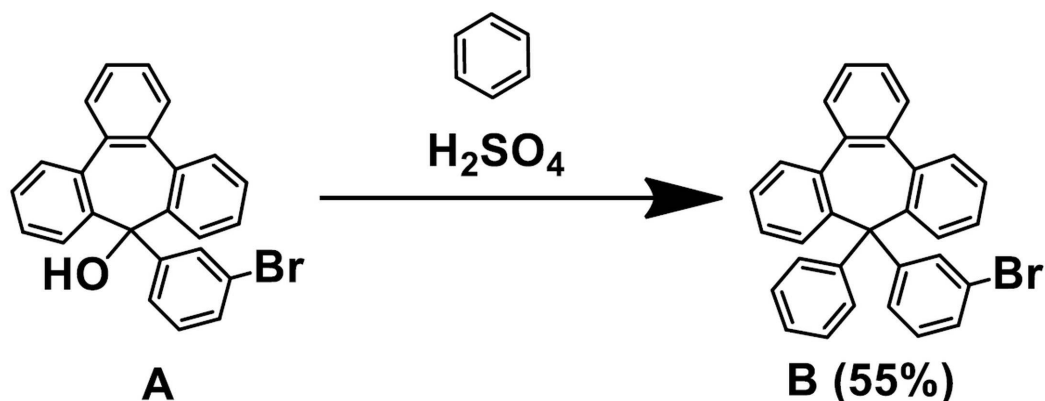
【0185】

FAB-MS により測定された化合物 A の分子量は、345 であった。

【0186】

(化合物 B の合成)

【化53】



30

【0187】

アルゴン (Ar) 雰囲気下で、100 mL の三口フラスコに化合物 A 4.13 g を 25 mL のベンゼン溶媒に溶かし、硫酸 (H_2SO_4) 0.8 mL を溶解させたベンゼン 3 mL を追加した後、 80°C で 5 時間攪拌した。空冷の後、 NaHCO_3 水溶液を添加して pH 7 に調節し、有機層を分取し、溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエンとヘキサンの混合溶媒を使用) で精製した後、トルエン/ヘキサンの混合溶媒で再結晶を行い、白色固体の化合物 B を 2.60 g (収率 55%) 得た。

40

【0188】

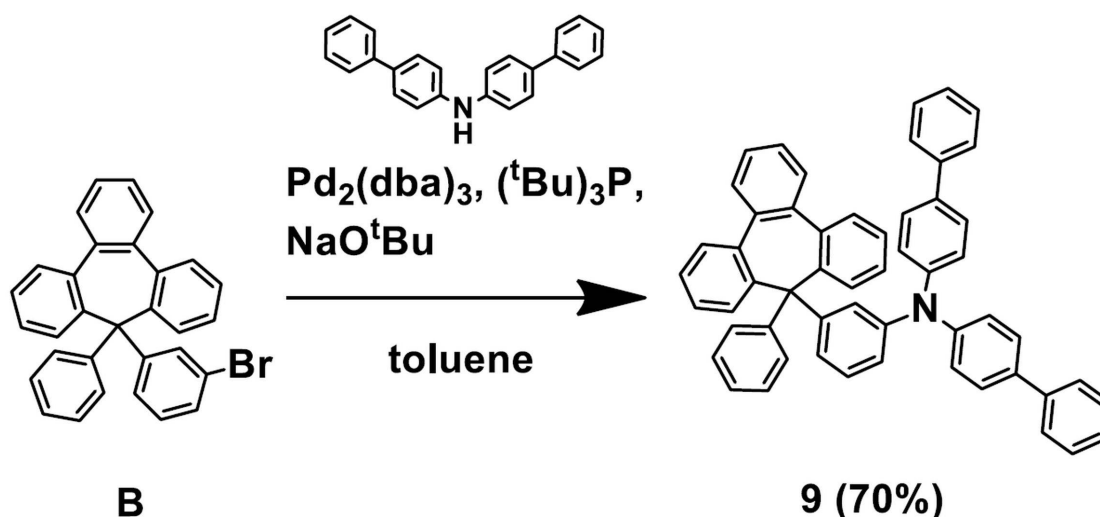
FAB-MS によって測定された化合物 B の分子量は、473 であった。

【0189】

50

(化合物 9 の合成)

【化 5 4】



【0190】

アルゴン (Ar) 雰囲気下で、200 mL の三口フラスコに化合物 B 2.37 g とビス (4-ビフェニル) アミン 1.61 g、ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0) ($\text{Pd}(\text{dba})_2$) 0.264 g、トリ-tert-ブチルホスフィン ($(\text{t-Bu})_3\text{P}$) 0.33 g、ナトリウム tert-ブトキシド (NaO^tBu) アントラセニル基 93 g を入れ、60 mL のトルエン溶媒中で 8 時間加熱還流撹拌した。空冷の後、水を加え、有機層を分取し、溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒を使用) で精製した後、トルエン/ヘキサンの混合溶媒で再結晶を行い、白色固体の化合物 9 を 2.50 g (収率 70%) 得た。

【0191】

FAB-MS によって測定された化合物 9 の分子量は、714 であった。また、 $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) で測定された化合物 9 のケミカルシフト値 (δ) は、8.12 (d、2H、 $J=7.20\text{ Hz}$)、7.93 (d、1H、 $J=8.10\text{ Hz}$)、7.89–7.82 (m、5H)、7.80–7.74 (m、4H)、7.72 (s、1H)、7.71–7.63 (m、4H)、7.48–7.41 (m、12H) であった。

【0192】

2. 化合物 10 の合成

化合物 10 は、化合物 9 の合成でビス (4-ビフェニル) アミンの代わりに N-[4-(1-ナフタレニル)フェニル]-1-ナフタレンアミンを使用したことを除き、同一の方法で合成した。FAB-MS によって測定された化合物 10 の分子量は、738 であった。また、 $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) で測定された化合物 10 のケミカルシフト値 (δ) は、8.09 (d、2H、 $J=7.10\text{ Hz}$)、7.96 (d、1H、 $J=8.10\text{ Hz}$)、7.89–7.85 (m、9H)、7.80–7.74 (m、5H)、7.73 (s、1H)、7.71–7.66 (m、3H)、7.48–7.21 (m、18H) であった。

【0193】

3. 化合物 28 の合成

10

20

30

40

50

Chemical reaction scheme showing the synthesis of compound **28** from compound **C** and a fluorenyl-substituted benzene derivative.

Reaction conditions: $p\text{-MePhSO}_3\text{H}$, Dioxane, 90°C , 5 h.

Yield: **28** (62%).

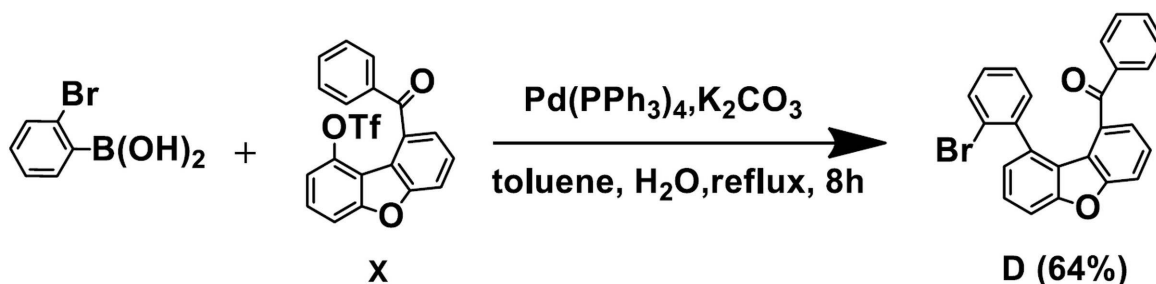
アルゴン (Ar) 雰囲気下で、100 mL の三口フラスコに化合物 C 3.41 g と 9-(2-ナフタレニル)-アントラセン 3.05 g と p-MePhSO₃H 0.51 g、ジオキサン 45 mL とを加えた後、90℃で5時間攪拌した。空冷の後、NaHCO₃水溶液を添加してpH 7 に調節し、有機層を分取し、溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエンとヘキサンの混合溶媒を使用) で精製した後、トルエン/ヘキサンの混合溶媒で再結晶を行い、白色固体の化合物 28 を 3.85 g (収率 62%) 得た。FAB-MS によって測定された化合物 28 の分子量は、621 であった。また、¹H-NMR (CDCl₃) で測定された化合物 28 のケミカルシフト値 (δ) は、8.22-8.10 (m, 9H)、8.02 (d, 2H、J=7.20 Hz)、7.95 (d, 1H、J=8.10 Hz)、7.92 (s, 1H)、7.89-7.82 (m, 9H)、7.80-7.74 (m, 10H) であった。

化合物 30 は、化合物 28 の合成で 9-(2-ナフタレニル)-アントラセンの代わりに 6-フェニル-クリセンを使用したことを除き、同一の方法で合成した。FAB-MS により測定された化合物 30 の分子量は、621 であった。また、 $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) で測定された化合物 30 のケミカルシフト値 (δ) は、8.20-8.10 (m、9H)、8.02 (d、2H、 $J=7.20\text{ Hz}$)、7.90 (d、1H、 $J=8.10\text{ Hz}$)、7.87 (s、1H)、7.82-7.77 (m、10H)、7.70-7.54 (m、9H) であった。

化合物 36 は、化合物 28 の合成で 9- (2-ナフタレニル) -アントラセンの代わりに N、N-ジフェニル-9-アントラセンアミンを使用したことを除き、同一の方法で合成した。FAB-MS によって測定された化合物 30 の分子量は、662 であった。また、¹H-NMR (CDCl₃) で測定された化合物 30 のケミカルシフト値 (δ) は、8.32 (s、1H)、8.22-8.10 (m、9H)、8.02 (d、2H、J=7.20 Hz)、7.95 (d、1H、J=8.10 Hz)、7.93 (d、2H、J=8.10 Hz)、7.92 (s、1H) 7.89-7.82 (m、9H)、7.80-7.74 (m、10H) であった。

(化合物 D の合成)

【化 5 6】



10

【 0 1 9 8 】

アルゴン (Ar) 雰囲気下で、200 mL の三口フラスコに 2-ブロモボロン酸 2.00 g、化合物 X 4.20 g、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) ($\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$) 0.263 g、炭酸カリウム (K_2CO_3) 3.86 g を添加してトルエン 50 mL、水 20 mL の混合溶媒の中で 8 時間加熱還流撹拌した。空冷の後、水を添加して有機層を分取し、溶媒蒸留した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(トルエンとヘキサンの混合溶媒を使用)で精製した後、トルエン/ヘキサンの混合溶媒で再結晶を行い、白色固体の化合物 D を 2.73 g (収率 64%) 得た。

【 0 1 9 9 】

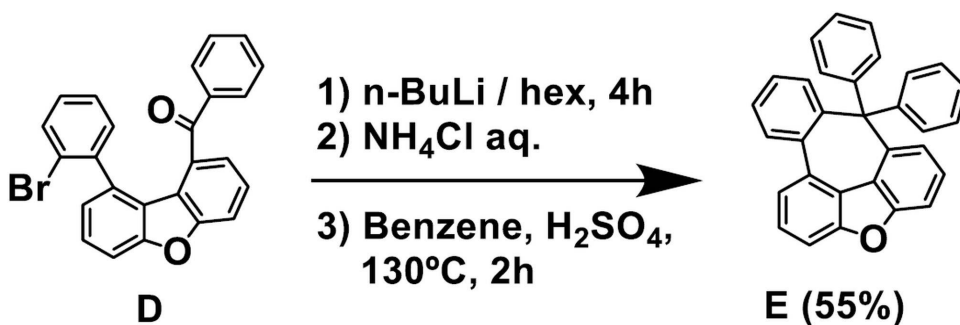
FAB-MSによって測定された化合物Dの分子量は、427であった。

20

【 0 2 0 0 】

(化合物 E の合成)

【化 5 7】



30

【 0 2 0 1 】

500 mLの三口フラスコに、化合物D 4.27 gの脱水THF溶液70 mLを添加して-78℃で攪拌した。ここに1.58 Mの*n*-BuLiのヘキサン溶液6.75 mLを滴下し、2.5時間攪拌した。その後、室温で3時間攪拌した。反応の後、この混合液に飽和NH₄Cl水溶液を添加し、1時間攪拌した。これを水で洗浄し、得られた有機相を濃縮して白色固体を得た。500 mLのナス型フラスコに、このキャンディーのような状態の物質とベンゼン 100 mLと硫酸 2.4 mLを入れ、窒素雰囲気下で、130℃、2時間加熱攪拌して反応させた。反応の後、この反応混合物を氷冷した350 mLの水に滴下した。白色結晶を析出させ、生成された固体を濾過除去し、メタノールで洗浄後、乾燥させた。白色粉末の化合物Eを2.24 g (収率55%) 得た。

40

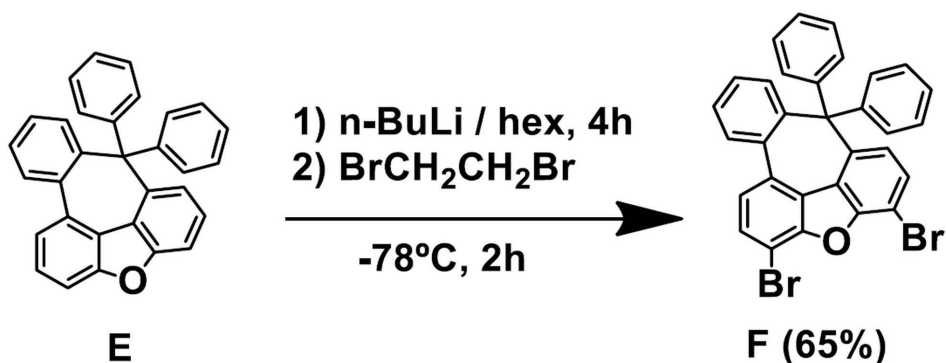
【 0 2 0 2 】

FAB-MSによって測定された化合物Eの分子量は、408であった。

【 0 2 0 3 】

(化合物 F の合成)

【化58】



10

【0204】

500 mLの三口フラスコに化合物E 4.08 gの脱水THF溶液70 mLを添加して-78°Cで攪拌した。ここに1.58 Mのn-BuLiのヘキサン溶液6.98 mLを滴下し、2.5時間攪拌した。ここに1,2-ジブロモエタン 1.20 gの脱水THF溶液85 mLを滴下して2時間攪拌した後、室温で3時間攪拌した。反応の後、この混合液に1 N塩酸水溶液を添加し、1時間攪拌した。これを水で洗浄し、得られた有機相を濃縮して白色固体を得た。生成された固体を濾過し、エタノール／ヘキサンで洗浄後、乾燥させた。白色粉末の化合物Fを3.68 g（収率65%）得た。

20

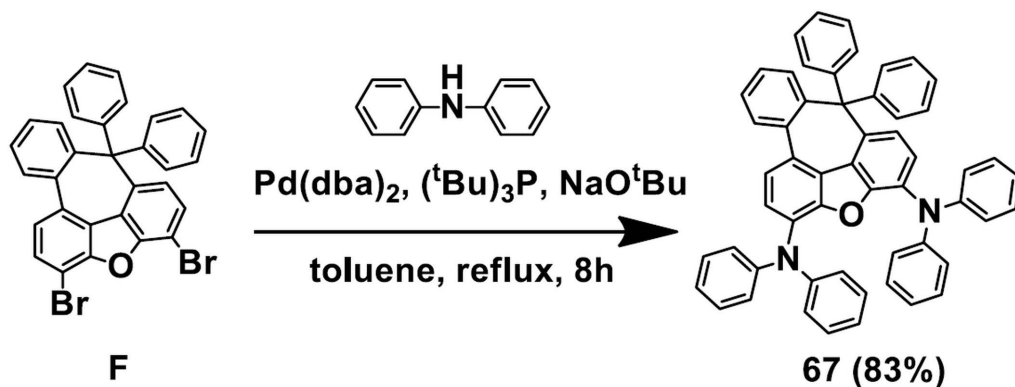
【0205】

FAB-MSによって測定された化合物Fの分子量は、566であった。

【0206】

（化合物67の合成）

【化59】



30

【0207】

アルゴン（Ar）雰囲気下で、200 mLの三口フラスコに化合物F 5.66 g、ジフェニルアミン 3.40 g、ビス（ジベンジリデンアセトン）パラジウム（0）（Pd(dba)₂） 0.11 g及びナトリウムtert-ブトキシド（NaO^t-Bu） 4.11 gを添加して70 mLトルエン溶媒の中で8時間加熱還流攪拌した。冷却の後、水を添加して有機層を分取し、溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエンとヘキサンの混合溶媒を使用）で精製した後、トルエン／ヘキサン混合溶媒で再結晶を行って、白色固体の化合物67を6.17 g（収率83%）得た。

40

【0208】

FAB-MSによって測定された化合物67の分子量は、743であった。

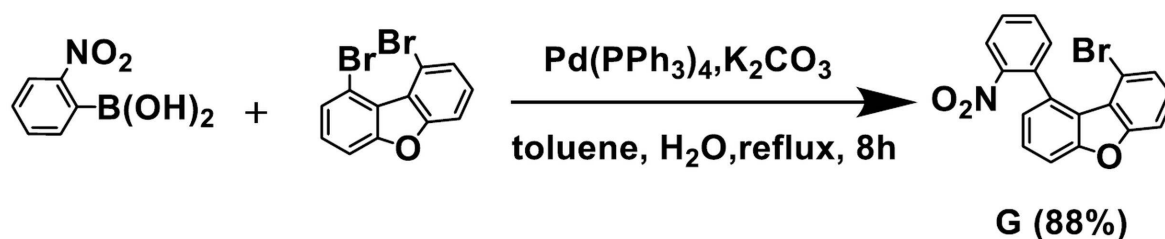
【0209】

7. 化合物110の合成

（化合物Gの合成）

50

【化 6 0】



【0 2 1 0】

アルゴン（Ar）雰囲気下で、200 mL の三口フラスコに 2-ニトロフェニルボロン酸 1.67 g、1,8-ジブロモジベンゾフラン 3.26 g、テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（0）（Pd（PPh₃）₄） 0.263 g、及び炭酸カリウム（K₂CO₃） 3.86 g を入れ、トルエン 50 mL、水 20 mL の混合溶媒の中で 8 時間加熱還流撹拌した。空冷の後、水を添加して有機層を分取し、溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエンとヘキサンの混合溶媒を使用）で精製した後、トルエン／ヘキサンの混合溶媒で再結晶を行って、白色固体の化合物 G を 3.24 g（収率 88%）得た。

10

【0 2 1 1】

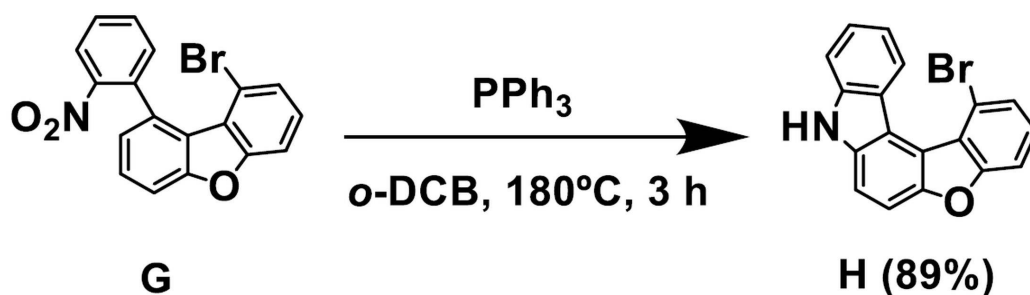
FAB-MS によって測定された化合物 G の分子量は、368 であった。

【0 2 1 2】

（化合物 H の合成）

20

【化 6 1】



30

【0 2 1 3】

アルゴン（Ar）雰囲気下で、200 mL の三口フラスコに化合物 G 1.84 g 及び PPh₃ 2.51 g を入れ、80 mL o-DCB 溶媒中 180°C で 3 時間加熱撹拌した。空冷の後、水を添加して有機層を分取し、溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエンとヘキサンの混合溶媒を使用）で精製した後、トルエン／ヘキサンの混合溶媒で再結晶を行って、白色固体の化合物 H を 1.50 g（収率 89%）得た。

【0 2 1 4】

FAB-MS によって測定された化合物 H の分子量は、336 であった。

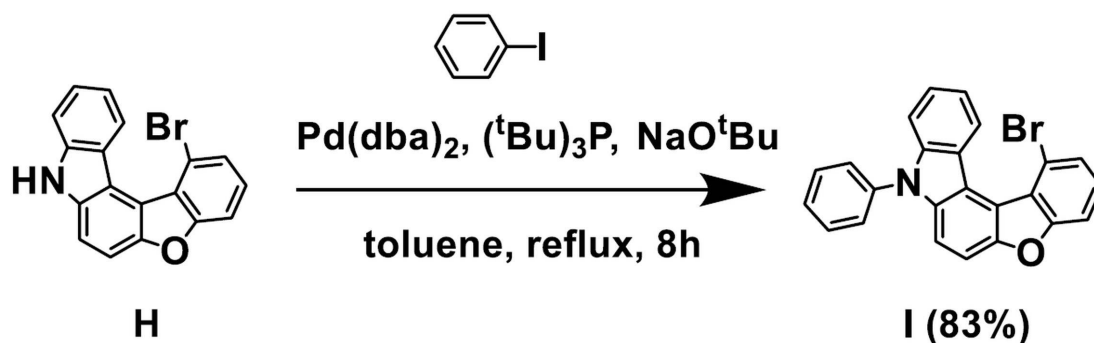
40

【0 2 1 5】

（化合物 I の合成）

50

【化 6 2】



10

【0 2 1 6】

アルゴン (Ar) 雰囲気下で、200 mL の三口フラスコに化合物 H 3.36 g、ヨードベンゼン 1.00 g、ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム (0) (Pd(dba)_2) 0.243 g、 $(\text{t-Bu})_3\text{P}$ 0.13 g 及びナトリウム *tert*-ブトキシド (NaOt-Bu) 2.13 g を入れ、70 mL トルエン溶媒中 8 時間加熱還流撹拌した。空冷の後、水を添加して有機層を分取し、溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエンとヘキサンの混合溶媒を使用) で精製した後、トルエン／ヘキサンの混合溶媒で再結晶を行って、白色固体の化合物 I を 3.42 g (収率 83%) 得た。

20

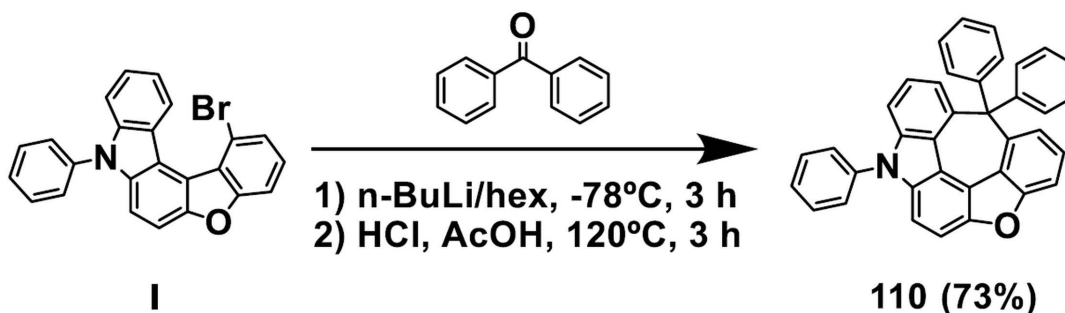
【0 2 1 7】

FAB-MS によって測定された化合物 I の分子量は、412 であった。

【0 2 1 8】

(化合物 110 の合成)

【化 6 3】



30

【0 2 1 9】

300 mL の三口フラスコに化合物 I 4.12 g の脱水 THF 溶液 30 mL を -78°C で撹拌した。ここに 1.58 M の *n*-BuLi のヘキサン溶液を 6.3 mL 滴下し、2.5 時間撹拌した。ここにベンゾフェノン 1.60 g の脱水 THF 溶液 45 mL を滴下し、2 時間撹拌した後、室温で 3 時間撹拌した。反応の後、混合液に 1 N 塩酸水溶液を添加し、1 時間撹拌した。これを水で洗浄し、得られた有機相を濃縮して、粘性固体を得た。300 mL のフラスコに前記粘性固体と氷酢酸 30 mL 及び塩酸 1.4 mL とを入れ、窒素雰囲気下で、 130°C 、2 時間加熱撹拌し、反応させた。反応の後、この反応混合液を氷冷した 150 mL の水に滴下した。白色結晶を析出させた後、生成された固体を濾過除去し、メタノールで洗浄の後、乾燥させた。最終的に、化合物 110 の白色粉末 3.64 g (収率 73%) を得た。

40

【0 2 2 0】

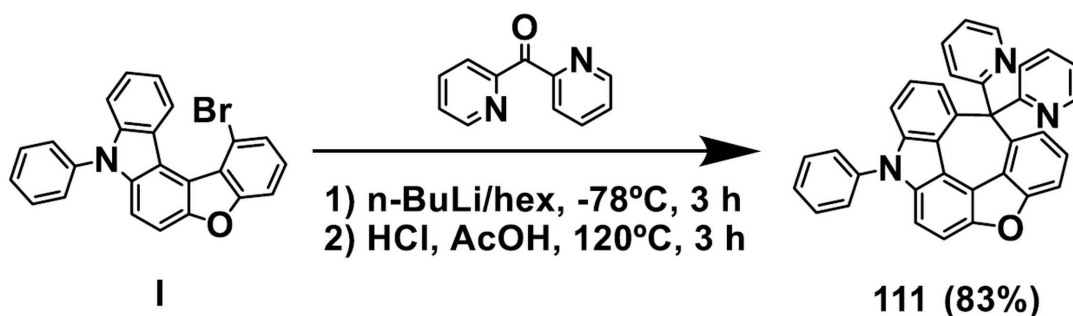
FAB-MS によって測定された化合物 110 の分子量は、498 であった。

【0 2 2 1】

8. 化合物 111 の合成

50

【化 6 4】



10

【0 2 2 2】

300 mL の三口フラスコに化合物 I 4.12 g の脱水 THF 溶液を 30 mL 添加して -78°C で攪拌した。ここに 1.58 M の *n*-BuLi のヘキサン溶液を 6.3 mL 滴下し、2.5 時間攪拌した。ここにジ-2-ピリジニル-メタノン 1.64 g の脱水 THF 溶液 45 mL を滴下し、2 時間攪拌した後、室温で 3 時間攪拌した。反応の後、この混合液に 1 N 塩酸水溶液を添加し、1 時間攪拌した。これを水で洗浄し、得られた有機相を濃縮した後、粘性固体を得た。300 mL のフラスコに、この粘性固体と氷酢酸 30 mL 及び塩酸 1.4 mL とを入れ、窒素雰囲気下で、 130°C 、2 時間加熱攪拌し、反応させた。反応の後、この反応混合液を氷冷した 150 mL の水に滴下した。白色結晶を析出させた後、生成された固体を濾過除去し、メタノールで洗浄の後、乾燥させた。最終的に、化合物 111 の白色粉末を 4.15 g (収率 83%) を得た。

20

【0 2 2 3】

FAB-MS によって測定された化合物 111 の分子量は、500 であった。

【0 2 2 4】

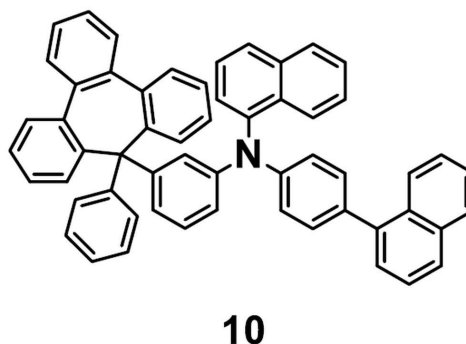
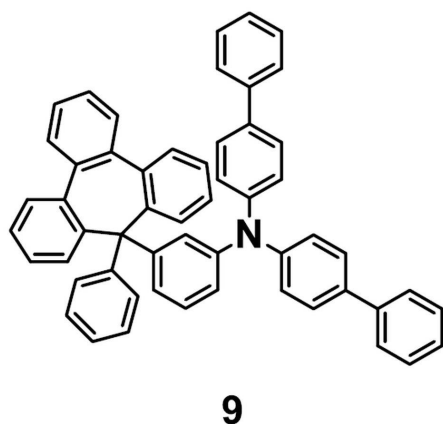
(実験例)

1. 実験例 1

上述した化合物 9 及び化合物 10 を正孔輸送材料として使用して実施例 1 及び実施例 2 の有機電界発光素子を作製した。

[実施例化合物]

【化 6 5】



30

40

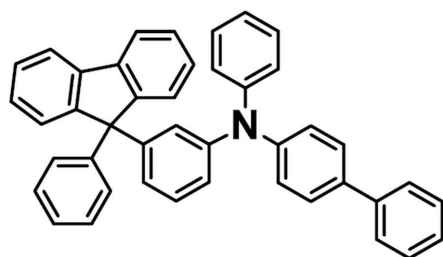
【0 2 2 5】

下記の比較例化合物 X-1 及び X-2 を正孔輸送材料として使用して比較例 1 及び比較例 2 の有機電界発光素子を作製した。

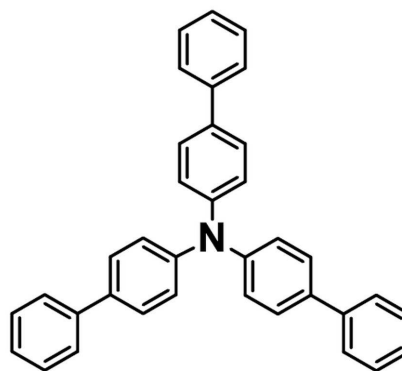
[比較例化合物]

50

【化 6 6】



X-1



X-2

【0226】

実施例 1、2 及び比較例 1、2 の有機電界発光素子は、ITO で 150 nm 厚さの第 1 電極を形成し、TNANA で 60 nm 厚さの正孔注入層を形成し、30 nm 厚さの正孔輸送層を形成し、ADN に TBP を 3 % ドープした 25 nm 厚さの発光層を形成し、Alq3 で 25 nm 厚さの電子輸送層を形成し、LiF で 1 nm 厚さの電子注入層を形成し、Al で 100 nm 厚さの第 2 電極を形成した。各層は、真空雰囲気下で、蒸着法によって形成した。

【0227】

次に、作製した有機電界発光素子の駆動電圧、発光効率及び半減寿命を評価した。評価結果を下記の表 1 に示す。各実施例及び比較例の駆動電圧及び発光効率は 10 mA / cm² の電流密度での測定値である。また、半減寿命は、1000 cd / m² を初期輝度として測定した結果である。

【0228】

また、測定は、Keithley Instruments 社の 400 シリーズのソースメーター、色彩輝度計 CS-200 (株式会社コニカミノルタホールディングス、測定角 1°)、測定用 PC プログラム Lab VIEW 8.2 (株式会社日本ナショナルインスツルメンツ) を使用して暗室内で行った。

【0229】

【表 1】

	正孔輸送層	駆動電圧 (V)	発光効率 (cd/A)	寿命 LT50 (h)
実施例 1	実施例化合物 9	5.4	6.5	2、100
実施例 2	実施例化合物 10	5.5	6.5	2、050
比較例 1	比較例化合物 X-1	6.3	5.2	1、500
比較例 2	比較例化合物 X-2	6.5	5.0	1、450

【0230】

表 1 の結果を参照すると、実施例 1 及び実施例 2 は、比較例 1 及び比較例 2 に比べて寿命及び効率が向上したことが分かる。実施例 1 において使用された実施例化合物 9 及び実施

例 2 において使用された実施例化合物 10 は、各々アミンにトリベンゾシクロヘプテンが導入された構造を有し、トリベンゾシクロヘプテンの高い電荷耐性によってアミンの優れた正孔輸送能力を維持すると同時に寿命が向上した。また、トリベンゾシクロヘプテンの大きい体積によって分子対称性が崩れ、アモルファス性が向上して高い素子効率を示すようになる。比較例 1 において使用された比較例化合物 X-1 は、アミンにフルオレニル基が導入された構造を有し、フルオレニル基の体積が十分に大きくないため結晶性が高く、アモルファス性が低下し、低効率及び短寿命となる。比較例 2 において使用された比較例化合物 X-2 は、分子全体の平面性が高いため結晶性が高く、アモルファス性が低下するため、低効率及び短寿命となる。

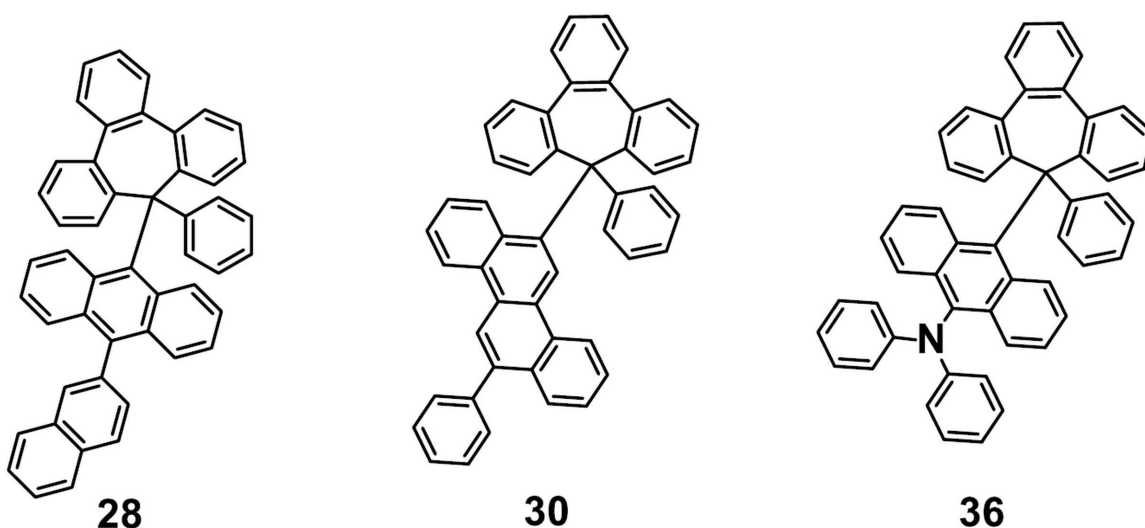
【0231】

2. 実験例 2

上述した化合物 28、化合物 30、及び化合物 36 を発光層ホスト材料として使用して実施例 3～実施例 5 の有機電界発光素子を作製した。

【実施例化合物】

【化 67】

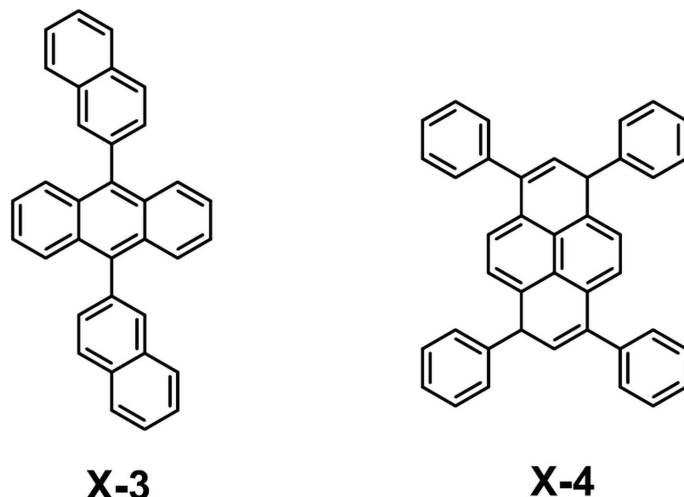


【0232】

下記の比較例化合物 X-3 及び X-4 を発光層ホスト材料として使用して比較例 3 及び比較例 4 の有機電界発光素子を作製した。

【比較例化合物】

【化 68】



【0233】

実施例 3～実施例 5 及び比較例 3、比較例 4 の有機電界発光素子は、ITO で 150 nm 厚さの第 1 電極を形成し、TNANA で 60 nm 厚さの正孔注入層を形成し、 α -NPD で 30 nm 厚さの正孔輸送層を形成し、TBP を 3 % ドープした 25 nm 厚さの発光層を形成し、Alq3 で 25 nm 厚さの電子輸送層を形成し、LiF で 1 nm 厚さの電子注入層を形成し、Al で 100 nm 厚さの第 2 電極を形成した。各層は、真空雰囲気下で、蒸着法によって形成した。

【0234】

次に、作製した有機電界発光素子の駆動電圧、発光効率、及び半減寿命を評価した。評価結果を下記の表 2 に示す。各実施例及び比較例の駆動電圧、及び発光効率は、10 mA/cm² の電流密度での測定値である。また、半減寿命は、1000 cd/m² を初期輝度として測定した結果である。

【0235】

また、測定は、Keithley Instruments 社の 400 シリーズのソースメーター、色彩輝度計 CS-200 (株式会社コニカミノルタホールディングス、測定角 1°)、測定用 PC プログラム Lab VIEW 8.2 (株式会社日本ナショナルインスツルメンツ) を使用して暗室内で行った。

【0236】

【表 2】

	発光層ホスト材料	駆動電圧 (V)	発光効率 (cd/A)	寿命 LT50 (h)
実施例 3	実施例化合物 28	5.7	6.2	2,000
実施例 4	実施例化合物 30	5.6	6.3	2,050
実施例 5	実施例化合物 36	5.7	6.2	1,950
比較例 3	比較例化合物 X-3	6.5	5.2	1,600
比較例 4	比較例化合物 X-4	6.6	4.8	1,650

【0237】

表 2 の結果を参照すると、実施例 3～実施例 5 は、比較例 3 及び比較例 4 に比べて寿命及び効率が向上したことが分かる。実施例 3 において使用された実施例化合物 28、実施例 4 において使用された実施例化合物 30 及び実施例 5 において使用された化合物 36 は、各々 3 環又は 4 環のアリール基にトリベンゾシクロヘプテンが導入された構造を有し、トリベンゾシクロヘプテンの高い電荷耐性によって多環アリール基の優れた発光特性を維持すると同時に寿命が向上される。また、トリベンゾシクロヘプテンの大きい体積によって分子対称性が崩れ、アモルファス性が向上して高い素子効率を示すようになる。比較例 3 において使用された比較例化合物 X-3 は、アントラセンの 9、10 位にナフタレンが置換されているため、平面性及び対称性が高い。これによって、結晶性が高く、アモルファス性が低下するので、低効率及び短寿命となる。比較例 4 において使用された比較例化合物 X-4 は、平面性及び対称性が高い分子構造を有し結晶性が高く、アモルファス性が低下するため、低効率及び短寿命となる。

【0238】

表 1 及び表 2 の結果から、本発明の一実施形態に係る多環化合物を有機電界発光素子に利用する場合、効率及び寿命向上効果が現れることが分かる。

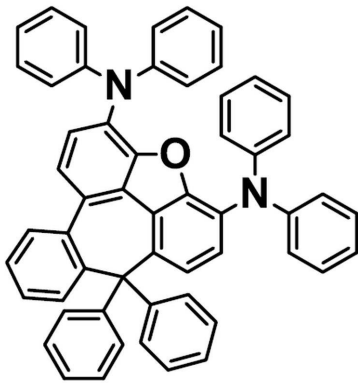
【0239】

3. 実験例 3

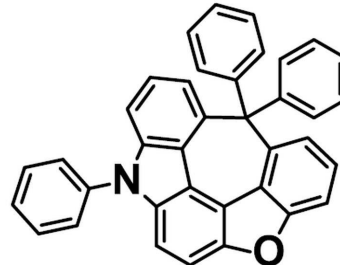
上述した化合物 67 及び化合物 110 を正孔輸送材料として使用して実施例 6 及び実施例 7 の有機電界発光素子を作製した。

〔実施例化合物〕

〔化 69〕



67



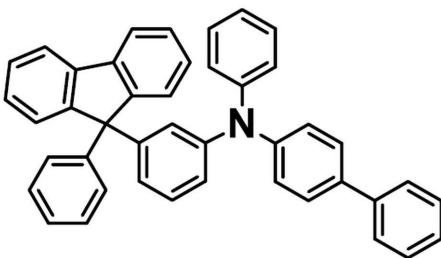
110

〔0240〕

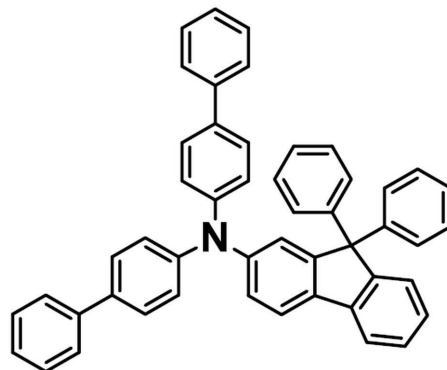
下記比較例化合物 X-5 及び X-6 を正孔輸送材料として使用して比較例 1 及び比較例 2 の有機電界発光素子を作製した。

〔比較例化合物〕

〔化 70〕



X-5



X-6

〔0241〕

実施例 6、7 及び比較例 5、6 の有機電界発光素子は、ITO で 150 nm 厚さの第 1 電極を形成し、TNANA で 60 nm 厚さの正孔注入層を形成し、30 nm 厚さの正孔輸送層を形成し、ADN に TBP を 3% ドープした 25 nm 厚さの発光層を形成し、Alq3 で 25 nm 厚さの電子輸送層を形成し、LiF で 1 nm 厚さの電子注入層を形成し、Al で 100 nm 厚さの第 2 電極を形成した。各層は、真空雰囲気下で、蒸着法によって形成した。

〔0242〕

次に、作製した有機電界発光素子の駆動電圧、発光効率及び半減寿命を評価した。評価結果を下記の表 3 に示す。各実施例及び比較例の駆動電圧、及び発光効率は、10 mA/cm² の電流密度での測定値である。また、半減寿命は、1000 cd/m² を初期輝度として測定した結果である。

〔0243〕

また、測定は、Keithley Instruments社の400シリーズのソースメーター、色彩輝度計CS-200（株式会社コニカミノルタホールディングス、測定角 1° ）、測定用PCプログラムLabVIEW 8.2（株式会社日本ナショナルインスツルメンツ）を使用して暗室内で行った。

【0244】

【表3】

	正孔輸送層	駆動電圧 (V)	発光効率 (cd/A)	寿命 LT50 (h)
実施例 6	実施例化合物 67	5.4	6.5	2、100
実施例 7	実施例化合物 110	5.5	6.5	2、050
比較例 5	比較例化合物 X-5	6.3	5.2	1、500
比較例 6	比較例化合物 X-6	6.5	5.0	1、550

【0245】

表3の結果を参照すると、実施例6及び実施例7は、比較例5及び比較例6に比べて寿命及び効率が向上したことが分かる。実施例6において使用された実施例化合物67及び実施例7において使用された化合物110は、トリベンゾシクロヘプテンの高い電荷耐性によって多環アリアル基の優れた発光特性を維持すると同時に寿命が向上される。また、トリベンゾシクロヘプテンの大きい体積によって分子対称性が崩れ、アモルファス性が向上し高い素子効率を示すようになる。比較例5において使用された比較例化合物X-5及び比較例6において使用された比較例化合物X-6は、アモルファス性が低下するため、低効率及び短寿命となる。

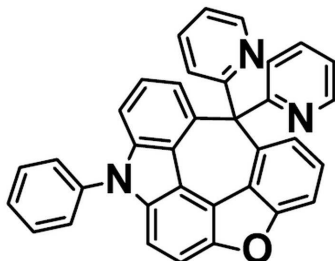
【0246】

4. 実験例4

上述した化合物111を発光層ホスト材料として使用して実施例8の有機電界発光素子を作製した。

【実施例化合物】

【化71】



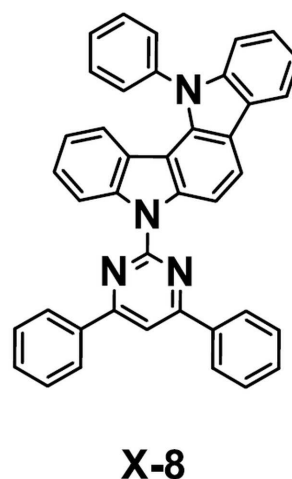
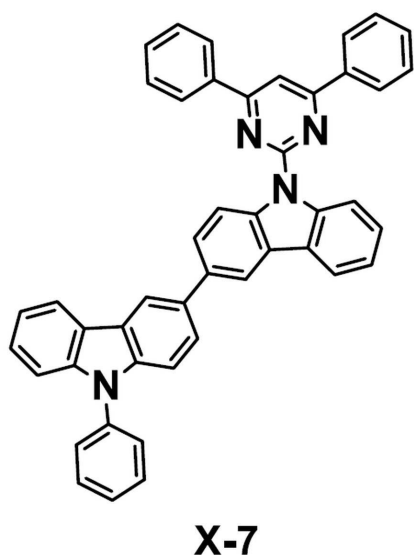
111

【0247】

下記の比較例化合物X-7及びX-8を発光層ホスト材料として使用して比較例7及び比較例8の有機電界発光素子を作製した。

【比較例化合物】

【化 7 2】



【0248】

実施例 8、比較例 7 及び比較例 8 の有機電界発光素子は、それぞれITOで150 nm厚さの第1電極を、TNANAで60 nm厚さの正孔注入層を、HMTPD（4、4'-Bis（N、N'-（3-tolyl）amino）-3、3'-dimethylbiphenyl）で30 nm厚さの正孔輸送層を、Ir（ppy）₃を20%ドーブした25 nm厚さの発光層を、Alq₃で25 nm厚さの電子輸送層を、LiFで1 nm厚さの電子注入層を、Alで100 nm厚さの第2電極を形成した。各層は、真空雰囲気下で、蒸着法によって形成した。

【0249】

次に、作製した有機電界発光素子の駆動電圧、発光効率及び半減寿命を評価した。評価結果を下記の表4に示す。各実施例及び比較例の駆動電圧及び発光効率は、10 mA/cm²の電流密度での測定値である。また、半減寿命は、1000 cd/m²を初期輝度として測定した結果である。

【0250】

また、測定は、Keithley Instruments社の400シリーズのソースメーター、色彩輝度計CS-200（株式会社コニカミノルタホールディングス、測定角1°）、測定用PCプログラムLab VIEW 8.2（株式会社日本ナショナルインスツルメンツ）を使用して暗室内で行った。

【0251】

【表 4】

	発光層ホスト材料	駆動電圧 (V)	発光効率 (cd/A)	寿命 LT50(h)
実施例 8	実施例化合物 1 1 1	4.0	35.3	2、300
比較例 7	比較例化合物 X - 7	4.9	29.2	1、500
比較例 8	比較例化合物 X - 8	5.5	28.8	1、450

【0252】

表4の結果を参照すると、実施例8は比較例7及び比較例8に比べて寿命及び効率が向上

したことが分かる。

【0253】

表1～表4の結果から本発明の一実施例による化学式(1)で示される多環化合物を有機電界発光素子に利用する場合、効率及び寿命向上効果が現れることが分かる。

【0254】

本発明の一実施例に係る化学式(1)で示される多環化合物は、例えば下記のように合成することができる。但し、これに限定されるものではない。

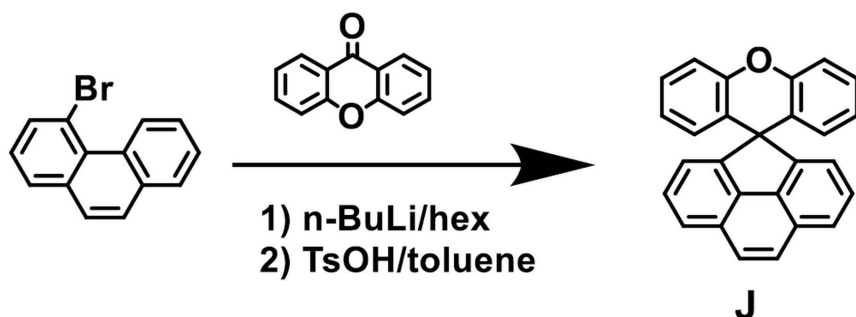
【0255】

(製造方法)

9. 化合物A-3の合成

(化合物Jの合成)

【化73】



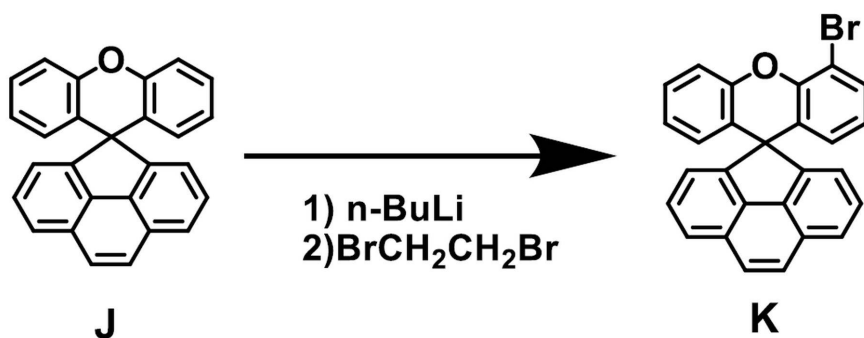
【0256】

アルゴン (Ar) 雰囲気下で、200 mL の三口フラスコに4-ブロモナフタレン1.3 g を入れ、30 mL のTHFに溶解し、0℃に冷却し、ここに1.6 M n-ブチルリチウム及びヘキサン溶液3.1 mLを滴下した。ここに9H-xanthene-9-one 0.98 gを含んだTHF溶液30 mLを添加して2時間攪拌した。反応液に水を添加して有機層を選別し、溶媒留去した。得られた生成物にp-トルエンスルホン酸 0.86 gを含んだトルエン30 mL添加し、110℃で1時間加熱した。空冷の後、反応液に水を添加して有機層を選別する溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン及びヘキサン) で精製し、白色固体の化合物Jを0.71 g (収率40%) 得た。得られた化合物Jの分子量をFAB-MS測定した結果、356 (C₂₇H₁₆O) という値を得た。

【0257】

(化合物Kの合成)

【化74】



【0258】

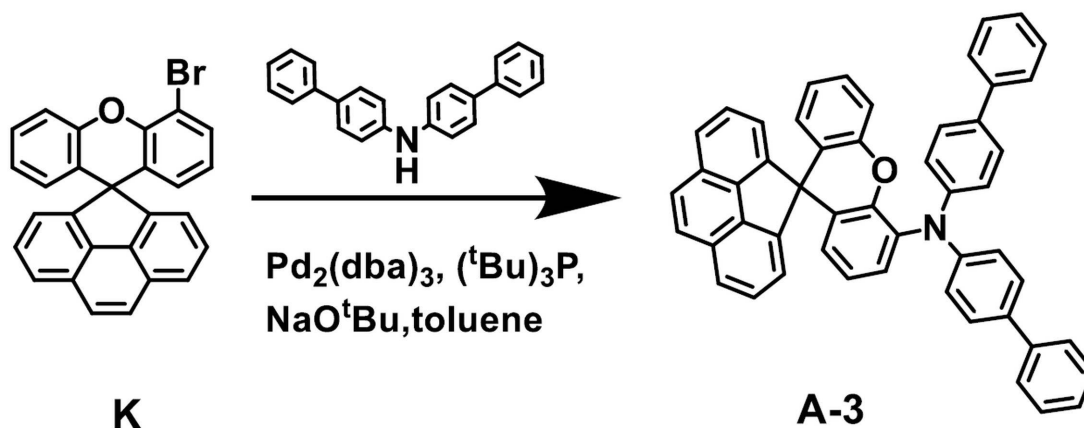
アルゴン (Ar) 雰囲気下で、200 mL の三口フラスコに化合物J 1.78 g を提供して30 mL のTHFに溶解し、0℃に冷却し、ここに1.6 M n-ブチルリチウム及びヘキサン溶液3.1 mLを滴下した。ここに1,2-ジブロモメタン1.00 gを含んだ

THF 溶液 30 mL を入れ、5 時間攪拌した。反応液に水を加えて有機層を選別して溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン及びヘキサン）で精製して白色固体の化合物 K を 1.30 g（収率 60%）得た。得られた化合物 K の分子量を FAB-MS 測定した結果、434（ $C_{27}H_{15}OBr$ ）という値を得た。

【0259】

（化合物 A-3 の合成）

【化75】



【0260】

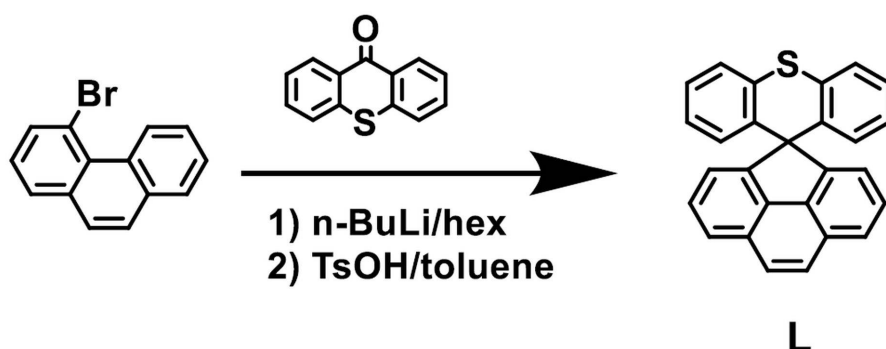
アルゴン（Ar）雰囲気下で、200 mL の三口フラスコに化合物 K 2.18 g、bis（1,1'-biphenyl）4-ylamine 1.61 g、tris（dibenzylideneacetone）dipalladium（0）0.46 g、トリ-tert-ブチルホスフィン 0.16 g 及びナトリウム tert-ブトキシド 1.93 g を加えて 60 mL のトルエン溶媒中で 7 時間加熱還流した。空冷の後、反応液に水を加えて有機層を選別して溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン及びヘキサン）で精製して白色固体の化合物 A-3 を 2.36 g（収率 70%）得た。得られた化合物 A-3 の分子量を FAB-MS 測定した結果、675（ $C_{51}H_{33}NO$ ）という値を得た。FAB-MS は、JEOL 製 JMS-700 を使用して測定した。

【0261】

10. 化合物 A-12 の合成

（化合物 L の合成）

【化76】



【0262】

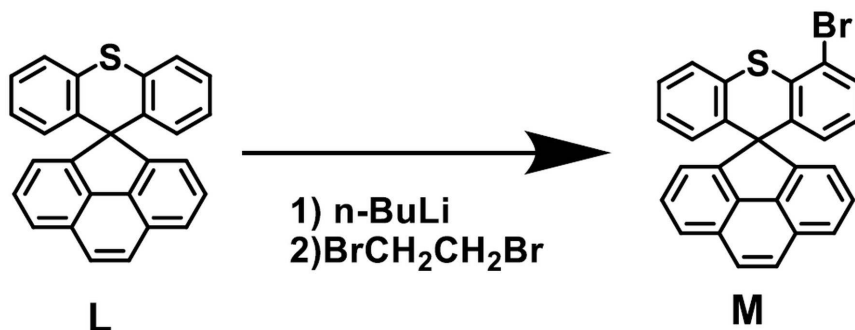
アルゴン（Ar）雰囲気下で、200 mL の三口フラスコに 4-ブロモフェナントレンアントラセニル基 3 g を提供して 30 mL の THF に溶解し、0℃ に冷却し、ここに 1.6 M n-ブチルリチウム及びヘキサン溶液 3.1 mL を滴下した。ここに 9H-thiaxanthene-9-one 1.06 g を含む THF 溶液 30 mL を添加して 2 時間攪拌した。空冷の後、水を添加して有機層を分離し、溶媒留去した。得られた生成物に p-

トルエンスルホン酸 0.86 gを含むトルエン30 mL添加して110℃で1時間加熱した。空冷の後、反応液に水を添加して有機層を分取し、溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン及びヘキサン）で精製して白色固体の化合物Lを0.73 g（収率39%）得た。得られた化合物Lの分子量をFAB-MS測定した結果、372（C₂₇H₁₆S）という値を得た。FAB-MSは、JEOL製JMS-700を使用して測定した。

【0263】

（化合物Mの合成）

【化77】



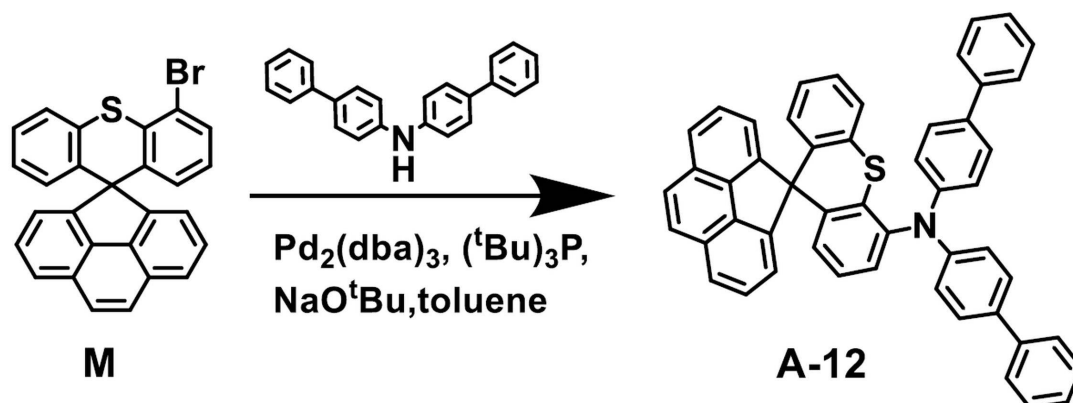
【0264】

アルゴン（Ar）雰囲気下で、200 mLの三口フラスコに化合物L 1.86 gを提供して30 mLのTHFに溶解し、0℃に冷却してここに1.6 M n-ブチルリチウム及びヘキサン溶液3.1 mLを滴下した。アルゴン（Ar）雰囲気下で、200 mLの三口フラスコに化合物L 1.86 gを提供して30 mLのTHFに溶解し、0℃に冷却してここに1.6 M n-ブチルリチウム及びヘキサン溶液3.1 mLを滴下した。空冷の後、水を添加して有機層を分離し、溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン及びヘキサン）で精製して白色固体の化合物Mを1.24 g（収率55%）得た。得られた化合物Mの分子量をFAB-MS測定した結果、450（C₂₇H₁₅SBr）という値を得た。FAB-MSは、JEOL製JMS-700を使用して測定した。

【0265】

（化合物A-12の合成）

【化78】



【0266】

アルゴン（Ar）雰囲気下で、200 mLの三口フラスコに化合物M 2.26 g、bis（1,1'-biphenyl）4-ylamine 1.61 g、tris（dibenzylideneacetone）dipalladium（0） 0.46 g、トリ-tert-ブチルホスフィン 0.16 g及びナトリウムtert-ブトキシド 1.9

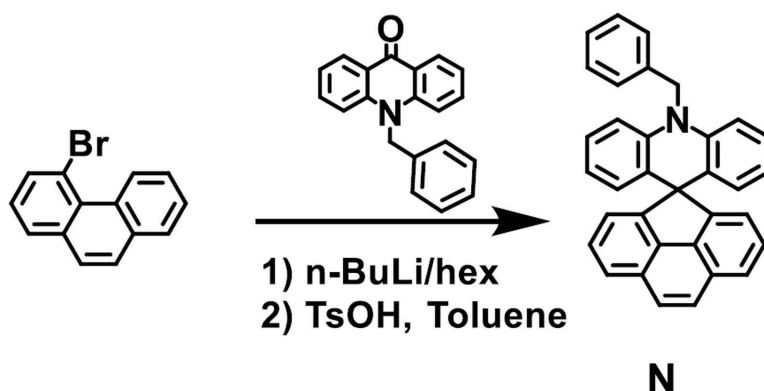
3 g を添加して 60 mL のトルエン溶媒で 7 時間加熱還流した。空冷の後、反応液に水を添加して有機層を分離し、溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン及びヘキサン）で精製して白色固体化合物 A-12 を 2.30 g（収率 66%）得た。得られた化合物 A-12 の分子量を FAB-MS 測定した結果、691（ $C_{51}H_{33}NS$ ）という値を得た。FAB-MS は、JEOL 製 JMS-700 を使用して測定した。

【0267】

11. 化合物 A-21 の合成

（化合物 N の合成）

【化79】



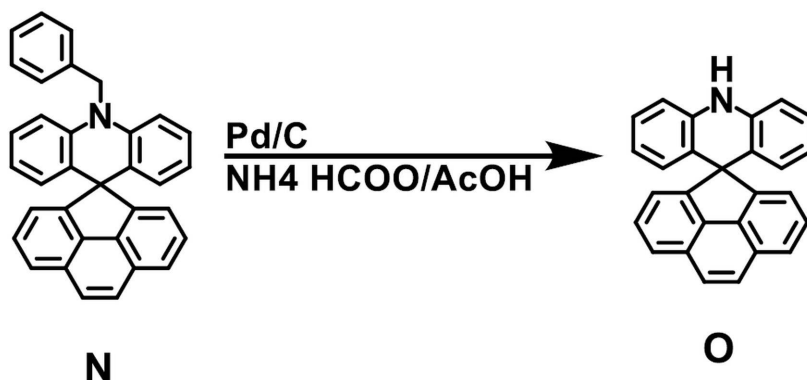
【0268】

アルゴン（Ar）雰囲気下で、200 mL の三口フラスコに 4-ブロモナフタレン 1.3 g を提供して 30 mL の THF に溶解し、0℃ に冷却し、これに 1.6 M n-ブチルリチウム及びヘキサン溶液 3.1 mL を滴下した。ここに 10-benzylacridine-9-one 0.42 g を含んだ THF 溶液 30 mL を加えて 2 時間間攪拌した。反応液に水を添加して有機層を選別し、溶媒留去した。得られた生成物に p-トルエンスルホン酸 0.86 g を含むトルエン 30 mL を加えて 110℃ で 1 時間加熱した。空冷の後、反応液に水を加えて有機層を選別し、溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン及びヘキサン）で精製して白色固体化合物 N を 0.78 g（収率 35%）得た。得られた化合物 N の分子量を FAB-MS 測定した結果、445（ $C_{34}H_{23}N$ ）という値を得た。FAB-MS は、JEOL 製 JMS-700 を使用して測定した。

【0269】

（化合物 O の合成）

【化80】



【0270】

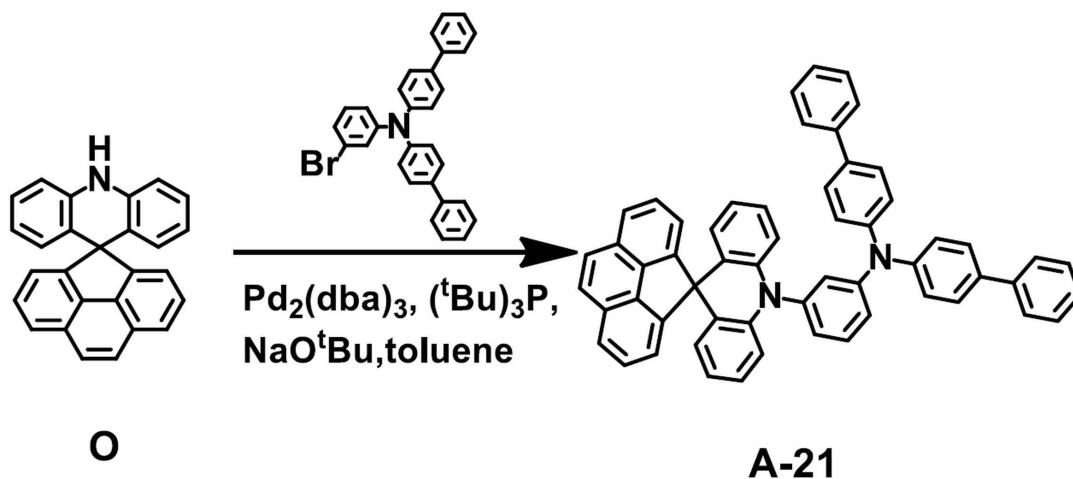
200 mL の三口フラスコに化合物 N 2.22 g 及び Pd/C 2.2 g を提供して酢酸

60 mLとギ酸アンモニウム 2 gとを加えて48時間還流した。空冷した反応液を濾過し、クロロホルムで洗浄した。ここに水を加え、2 MのNaOH水溶液で中和し、有機層を選別し、濃縮した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン及びヘキサン）で精製して白色固体化合物Oを1.33 g（収率75%）得た。得られた化合物Oの分子量をFAB-MS測定した結果、355（ $C_{27}H_{17}N$ ）という値を得た。FAB-MSは、JEOL製JMS-700を使用して測定した。

【0271】

（化合物A-21の合成）

【化81】



【0272】

アルゴン（Ar）雰囲気下で、200 mLの三口フラスコに化合物O 1.78 g、N-（1,1'-biphenyl）-4-yl）-N-（3-bromophenyl）-[1,1'-biphenyl]-4-amine 2.34 g、tris（dibenzylideneacetone）dipalladium（0） 0.46 g、トリ-tert-ブチルホスフィン 0.16 g、及びナトリウムtert-ブトキシド 1.93 gを加えて60 mLのトルエン溶媒の中で7時間加熱還流した。空冷の後、反応液に水を加えて有機層を選別し、溶媒留去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン及びヘキサン）で精製して白色固体化合物A-21を2.82 g（収率75%）得た。得られた化合物A-21の分子量をFAB-MS測定した結果、750（ $C_{57}H_{38}N_2$ ）を得た。FAB-MSは、JEOL製JMS-700を使用して測定した。

【0273】

（実験例）

5. 実験例5

上述した化合物A-3、A-12及びA-21を正孔輸送材料として使用して実施例9～実施例11の有機電界発光素子を作製した。

〔実施例化合物〕

10

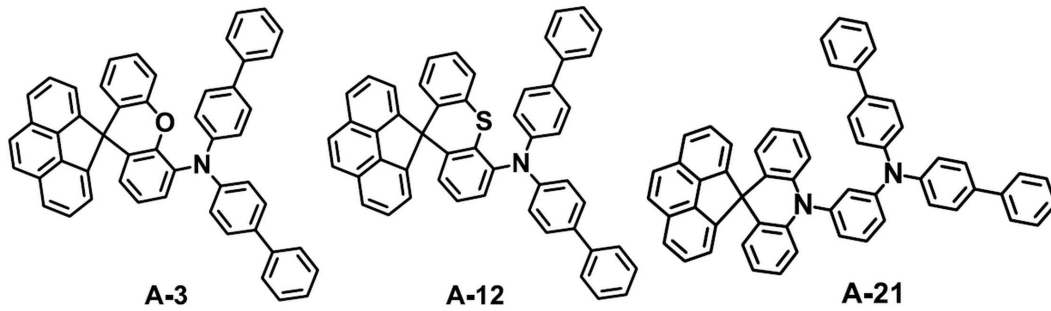
20

30

40

50

【化 8 2】



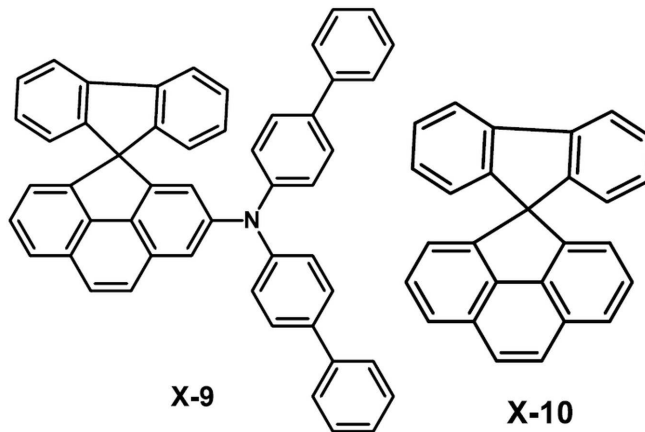
10

【 0 2 7 4】

下記の比較例化合物 X-9 及び X-10 を正孔輸送材料として使用して比較例 9 及び比較例 10 の有機電界発光素子を作製した。

【比較例化合物】

【化 8 3】



20

【 0 2 7 5】

ITO で 150 nm 厚さの陽極を形成し、2-TNATA で 60 nm 厚さの正孔注入層を形成し、30 nm 厚さの正孔輸送層を形成し、3% の TBP でドーピングされた ADN で 25 nm 厚さの発光層を形成し、Alq3 で 25 nm 厚さの電子輸送層を形成し、LiF で 1 nm 厚さの電子注入層を形成し、Al で 100 nm 厚さの陰極を形成した。

30

【 0 2 7 6】

次に、作製した有機電界発光素子の発光効率を評価した。評価結果を下記の表 5 に示す。発光効率は、10 mA / cm² の電流密度での測定値である。

【 0 2 7 7】

素子の電流密度は、Keithley Instruments 社の 400 シリーズのソースメーター、電圧は、色彩輝度計 CS-200 (株式会社コニカミノルタホールディングス、測定角 1°)、発光効率は、測定用 PC プログラム Lab VIEW 8.2 (株式会社日本ナショナルインスツルメンツ) を使用して測定した。

40

【 0 2 7 8】

50

【表 5】

素子作製例	正孔輸送層	電流密度 (mA/cm ²)	発光効率 (cd/A)
実施例 9	実施例化合物 A-3	10	6.6
実施例 10	実施例化合物 A-12	10	6.5
実施例 11	実施例化合物 A-21	10	6.4
比較例 9	比較例化合物 X-9	10	5.4
比較例 10	比較例化合物 X-10	10	0.4

【0279】

表5の結果を参照すると、実施例9～実施例11の有機電界発光素子が比較例9及び比較例10の有機電界発光素子より発光効率が優れていることを確認することができる。実施例9～実施例11に各々使用された実施例化合物A-3、A-12及びA-21は、比較例9及び比較例10に各々使用された比較例化合物X-9及びX-10と比較したとき、正孔輸送能力があるヘテロ原子を含むため、正孔輸送性が向上され、優れた発光効率を示す。

【0280】

以上、添付された図面を参照し、本発明の実施形態を説明したが、本発明が属する技術分野で通常の知識を有する者は、本発明のその技術的思想や必須的な特徴を変えずに他の具体的な形態に実施できることについて理解するべきである。したがって、上記実施形態は、全て例示的なものであり、限定的なものではない。

【符号の説明】

【0281】

10 有機電界発光素子

EL1 第1電極

HTR 正孔輸送領域

EML 発光層

ETR 電子輸送領域

EL2 第2電極

10

20

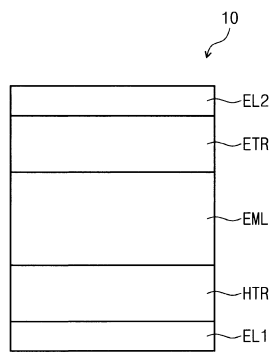
30

40

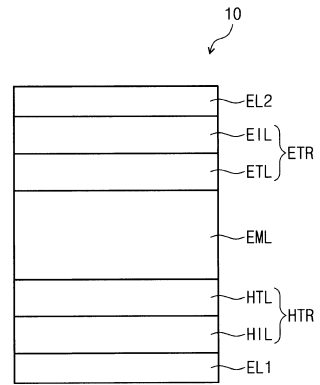
50

【図面】

【図 1】



【図 2】



10

20

30

40

50

フロントページの続き

(51)国際特許分類

F I

C 0 7 D 519/00 (2006.01)	C 0 7 D 251/24	
C 0 7 D 217/02 (2006.01)	C 0 7 D 519/00	3 1 1
C 0 7 D 209/08 (2006.01)	C 0 7 D 217/02	
C 0 7 D 307/93 (2006.01)	C 0 7 D 209/08	
C 0 7 D 491/16 (2006.01)	C 0 7 D 307/93	
C 0 7 D 405/14 (2006.01)	C 0 7 D 491/16	
C 0 7 D 333/80 (2006.01)	C 0 7 D 405/14	
C 0 7 D 409/14 (2006.01)	C 0 7 D 333/80	
C 0 7 D 417/14 (2006.01)	C 0 7 D 409/14	
C 0 7 D 495/16 (2006.01)	C 0 7 D 417/14	
C 0 7 D 413/14 (2006.01)	C 0 7 D 495/16	
C 0 7 D 493/06 (2006.01)	C 0 7 D 413/14	
C 0 7 D 495/06 (2006.01)	C 0 7 D 493/06	
C 0 7 D 491/06 (2006.01)	C 0 7 D 495/06	
C 0 7 D 487/06 (2006.01)	C 0 7 D 491/06	
C 0 7 D 307/94 (2006.01)	C 0 7 D 487/06	
C 0 7 D 491/20 (2006.01)	C 0 7 D 307/94	
C 0 7 D 209/86 (2006.01)	C 0 7 D 491/20	
C 0 7 D 335/04 (2006.01)	C 0 7 D 209/86	
C 0 7 D 221/20 (2006.01)	C 0 7 D 335/04	
C 0 7 C 211/58 (2006.01)	C 0 7 D 221/20	
C 0 7 C 211/61 (2006.01)	C 0 7 C 211/58	
C 0 7 C 13/66 (2006.01)	C 0 7 C 211/61	
C 0 9 K 11/06 (2006.01)	C 0 7 C 13/66	
C 0 7 C 211/54 (2006.01)	C 0 9 K 11/06	6 9 0
	C 0 7 C 211/54	C S P

神奈川県横浜市鶴見区菅沢町2-7 株式会社サムスン日本研究所内

(72)発明者 川村 久幸

神奈川県横浜市鶴見区菅沢町2-7 株式会社サムスン日本研究所内

審査官 東 裕子

(56)参考文献 特表2015-505819 (JP, A)

国際公開第2015/126156 (WO, A1)

米国特許出願公開第2008/0093987 (US, A1)

米国特許出願公開第2008/0079356 (US, A1)

米国特許出願公開第2008/0100207 (US, A1)

米国特許出願公開第2013/0328021 (US, A1)

米国特許出願公開第2014/0306190 (US, A1)

米国特許出願公開第2011/0003985 (US, A1)

特表2014-529586 (JP, A)

国際公開第2010/024562 (WO, A2)

国際公開第2004/022514 (WO, A1)

国際公開第2016/087017 (WO, A1)

Chemische Berichte, 1962年, Vol.95, p.431-442

Bulletin of the Chemical Society of Japan, 1979年, Vol.52, No.5, p.1447-1449

Macromolecular Research, 2011年, Vol.19, No.6, p.589-598

Journal of Physical Chemistry A, 1999年, Vol.103, No.1, p.10-20

(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)

C 0 7 C

C 0 7 D

C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)